



저작자표시 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

- 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.
- 이차적 저작물을 작성할 수 있습니다.
- 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:



저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 [이용허락규약\(Legal Code\)](#)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

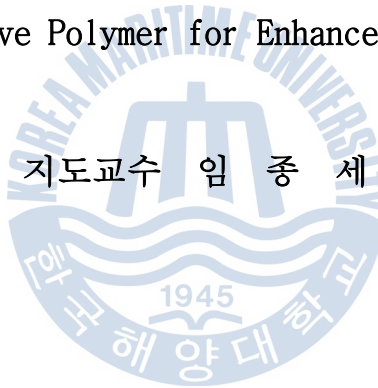
[Disclaimer](#) 

공학석사 학위논문

석유회수증진을 위한 pH 민감성 폴리머의 인공신경망 점도 추정 모델 개발

Development of Artificial Neural Network Viscosity Model
of pH-Sensitive Polymer for Enhanced Oil Recovery

지도교수 임 중 세



2010년 12월

한국해양대학교 대학원

해양에너지자원공학과

강 판 상

본 논문을 강판상의 공학석사 학위논문으로 인준함.

위원장 장 원 일 (인)

위 원 임 중 세 (인)

위 원 신 성 렬 (인)

2010년 12월

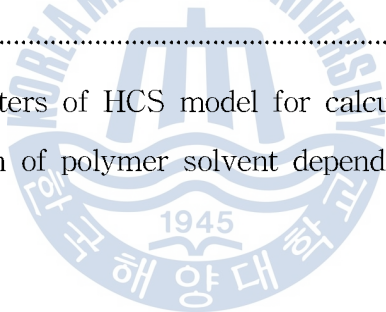
한국해양대학교 대학원

목 차

Abstract	1
제 1 장 서론	3
제 2 장 pH 민감성 폴리머주입법	5
제 1 절 기존 폴리머주입법의 개요 및 문제점	5
제 2 절 pH 민감성 폴리머의 정의	8
제 3 절 pH 민감성 폴리머주입법의 적용방법 및 장점	9
제 3 장 기존 폴리머 점도 추정 방법	11
제 1 절 일반 폴리머의 점도 추정 방법	11
제 2 절 HCS 모델을 이용한 pH 민감성 폴리머 점도 추정 방법	14
제 3 절 HCS 모델의 문제점	18
제 4 장 pH 민감성 폴리머의 인공신경망 점도 추정 모델 개발	20
제 1 절 인공신경망기법의 개요	20
제 2 절 학습 자료 및 학습 알고리즘	26
제 3 절 인공신경망 점도 추정 모델 구조	32
제 4 절 인공신경망 점도 추정 모델 검증	33
제 5 장 결론	41
참고문헌	45
부록	46

List of Tables

Table 3.1. Classification of viscosity	11
Table 3.2. Various viscosity models	12
Table 3.3. Input parameters for viscosity models	13
Table 3.4. Parameters for HCS model	19
Table 4.1. ANN application in the petroleum industry	25
Table 4.2. Measured viscosity for training ANN	30
Table 4.3. Linear regression analysis for estimated viscosity of ANN model trained by various algorithms	31
Table A.1. Microsoft® Excel VBA code for calculating HPAM viscosity by HCS model	46
Table A.2. Input parameters of HCS model for calculating viscosity	48
Table A.3. Ionic strength of polymer solvent depending on salinity	49



List of Figures

Fig. 2.1. Comparison of displacing fluid movement between water flooding and polymer flooding	6
Fig. 2.2. Chemical structure of partially hydrolyzed polyacrylamide	8
Fig. 3.1. A flow chart for the viscosity modeling procedure of HPAM polymer	14
Fig. 4.1. Schematic diagram of the biological neuron	20
Fig. 4.2. Single unit diagram for artificial neuron	22
Fig. 4.3. Classification of artificial neural networks based on their structures	23
Fig. 4.4. Viscosity measurements for 0.5% HPAM prepared in 0.5% sodium chloride brine as a function of pH	27
Fig. 4.5. Influence of HPAM concentration on measured viscosity as a function of pH for HPAM prepared in 0.5% sodium chloride brine at shear rate of 10 s^{-1}	28
Fig. 4.6. Influence of salinity on measured viscosity as a function of pH for 0.5% HPAM prepared in sodium chloride brine	28
Fig. 4.7. Influence of degree of hydrolysis on measured viscosity as a function of pH for 0.5% HPAM prepared in 0.5% sodium chloride brine	29
Fig. 4.8. Influence of molecular weight on measured viscosity as a function of pH for 0.5% HPAM prepared in 0.5% sodium chloride brine	29
Fig. 4.9. Structure of ANN viscosity model and its parameters for viscosity	

modeling of pH-sensitive polymer	32
Fig. 4.10. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #1	33
Fig. 4.11. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #2	34
Fig. 4.12. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #3	35
Fig. 4.13. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #4	35
Fig. 4.14. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #5	36
Fig. 4.15. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #6	37
Fig. 4.16. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #7	37
Fig. 4.17. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #8	38
Fig. 4.18. AAPE between measured data and estimated data by ANN viscosity model and HCS model	39
Fig. 4.19. AAPE between estimated data by HCS model and ANN viscosity model at shear rate of 1 s^{-1}	40
Fig. A.1. Captured input screen in Microsoft® Excel worksheet for 0.5% Flopaam3330S prepared in 5.0% sodium chloride brine	45

Development of Artificial Neural Network Viscosity Model of pH-Sensitive Polymer for Enhanced Oil Recovery

Pan-Sang Kang

Department of Ocean Energy & Resources Engineering

Graduate School of

Korea Maritime University

Abstract

Polymer flooding is one of the most common technologies for enhanced oil recovery(EOR) by mobility and conformance control. However, it has technical problems such as high injection pressure with associated pumping cost, creation of unwanted injection well fractures and mechanical degradation of polymers due to high shear near wellbore. Recently the use of partially hydrolyzed polyacrylamide (HPAM) which is a pH-sensitive polymer has been proposed for overcoming the problems of polymer flooding. Since viscosity of pH-sensitive polymer could change up to several times depending on pH and salinity, commercial reservoir simulators cannot estimate its viscosity variations. This limited capability may cause severe errors in polymer flooding designs. Therefore, it is necessary to develop viscosity correlations applicable to pH-sensitive polymer.

HCS(Huh-Choi-Sharma) model which combined modified Brannon-Peppas & Peppas model, modified Mark-Houwink equation, new power-law correlation and Carreau equation was proposed to compute the viscosity of HPAM solution. However, it has some problems such as necessary for empirical parameters and low accuracy in the case of high salinity and in the presence of divalent ions.

In this study, artificial neural network (ANN) which is usually used to model complex and nonlinear relationships between inputs and outputs has been used to estimate viscosity of pH-sensitive polymer. The experimentally measured viscosity data of HPAM and Levenberg-Marquardt algorithm is used to train ANN viscosity model which is composed of the four layers, one input layer with six neurons containing pH, polymer concentration, degree of hydrolysis, molecular weight, salinity, and shear rate, one output layer with one neuron which is viscosity, two hidden layers with five neurons each.

As a result of this study, ANN viscosity model which has only 6 input parameters without empirical parameter can estimate viscosity more precisely than HCS model which needs 21 parameters especially in high salinity condition. Unique features of ANN which are adaptive learning capabilities and expansibility could make ANN viscosity model to estimate viscosity more accurately and to be applicable to various conditions if sufficient data are available for training. ANN viscosity model suggested in this study could be implemented in an EOR process simulator for optimal mobility control applications.

제 1 장 서 론

중국, 인도 등과 같은 개발도상국들의 경제발전에 의한 석유수요의 급격한 증가와 산유국의 자원국유화정책, 신규 대형유전 탐사의 어려움 등으로 인해 1, 2차 생산기법 적용 이후 회수하지 못한 잔존석유에 대한 관심이 높아지고 있다. 저류층에 남아있는 석유자원을 경제적으로 회수할 수 있는 기술인 석유회수증진기법(Enhanced Oil Recovery; EOR)은 일반적으로 저류층에 존재하지 않는 물질을 주입하여 석유를 회수하는 기법을 말하며 다양한 종류의 석유회수기능이나 주입물질을 이용한 석유회수기법을 포함한다(Lake, 1989).

석유회수증진기법 중 하나인 폴리머주입법(polymer flooding)은 점도가 높은 폴리머 수용액을 저류층에 주입하여 석유와 물 사이의 유동도 비(mobility ratio)를 제어하거나 저류층의 유체투과도에 대한 불균질성을 낮추어 석유회수를 증진시킬 수 있는 방법 중 하나로써 비교적 낮은 비용으로 다양한 유전에 적용가능한 장점이 있다. 그러나 낮은 폴리머 주입성, 분해(degradation), 정체(retention) 등으로 인해 주입 비용이 높아지고 효율이 크게 떨어지는 단점이 있다. 폴리머주입법의 주입성을 향상시켜 주입정 근처에서 불필요한 균열 생성을 막고 주입에 소요되는 비용을 절감하며, 폴리머의 물리적 분해(mechanical degradation)를 최소화하여 폴리머주입법의 효율을 향상시키기 위해 최근 pH 민감성 폴리머에 대한 연구를 수행하기 시작했다. pH 민감성 폴리머를 실제 현장에 적용하기 위해서는 점도의 정확한 추정이 중요하나 pH가 변함에 따라 사슬형태인 폴리머 입자가 말리거나 퍼지면서 수용액 상태에서의 점도가 수 배 이상 변하는 특성이 있기 때문에 기존 상용 시뮬레이터의 점도모델로는 정확한 점도 추정이 어려웠다.

Huh 등(2005)과 Choi(2008)는 pH 민감성 폴리머의 점도 추정을 위해 micro gel의 팽창성질을 나타낸 Brannon-Peppas & Peppas 모델, 폴리머의 고유점도와 분자량의 관계를 나타낸 Mark-Houwink 방정식, 폴리머 점도와 농도와의

관계를 나타낸 Martin 방정식, 폴리머 점도와 전단율(shear rate)의 관계를 나타낸 Carreau 방정식을 수정 및 활용하여 HCS(Huh-Choi-Sharma) 모델을 개발하고 이를 실험으로 측정한 값과 비교하여 검증하였다. 그러나 HCS 모델은 추정에 필요한 변수가 21개이고 그 중에 7개가 경험변수로 변수파악을 위해서는 실험을 반드시 수행해야 하는 문제가 있다. 또한, 폴리머 점도 추정 모델은 다양한 폴리머에 적용할 수 있도록 확장성이 높아야 하는데 이 모델은 입력변수에 대한 확장성이 낮고 폴리머 수용액의 염도가 3 wt.% 이상이거나 2가 양이온 존재 시 정확도가 크게 떨어지는 문제점이 있다.

이 연구에서는 인공신경망(Artificial Neural Network; ANN)기법을 이용하여 HCS 모델보다 적은 변수로 점도를 더 정확하게 추정할 수 있는 새로운 모델을 제안하고자 한다. 인공신경망 점도 모델은 기존 점도 추정 모델보다 정확성, 확장성, 활용성면에서 향상을 기대할 수 있어 상용 시뮬레이터의 점도추정 모듈로써 활용이 가능할 것이다.



제 2 장 pH 민감성 폴리머주입법

제 1 절 기존 폴리머주입법의 개요 및 문제점

석유회수증진기법이란 일반적으로 저류층에 존재하지 않는 물질을 주입하여 석유를 회수하는 기법이다. 석유회수기능이나 주입물질의 종류에 따라 유동도 제어법(mobility control processes), 화학공법(chemical process), 혼합화유체주입법(miscible fluid flooding), 열공법(thermal method) 등으로 분류할 수 있다(임중세, 2007).

유동도제어법은 주입유체의 접촉효율(sweep efficiency)을 증가시키기 위하여 주입유체와 치환유체 사이의 상대적인 유동도 비를 제어하는 기법으로 주입유체와 치환유체사이의 유동도 비가 1이하일 경우 효율적인 치환과정으로 평가되며 치환효율(displacement efficiency)은 유동도 비가 감소할수록 증가하는 경향을 보인다. 여기서 유동도는 저류암의 유체투과도와 유체점도의 비, 접촉효율은 주입된 유체에 접촉하는 석유의 부피와 석유원시부존량의 비, 치환효율은 치환되는 석유의 부피와 석유에 접촉하는 주입유체 부피의 비로 정의한다(Lake, 1989). 대표적인 유동도제어법은 점성이 높은 폴리머 수용액을 저류층에 주입하는 폴리머주입법이다. 일반적으로 수공법(water flooding) 적용 시 물이 석유를 뒤에서 밀어내기보다는 유동에 대한 저항이 작은 주변지역으로 흘러가려는 경향으로 인해 석유회수량이 감소하고 생산수의 양의 증가할 수 있는데 폴리머주입법을 적용하면 생산수의 양이 줄어들고 석유회수량을 증진시킬 수 있으므로 수공법 적용 후 가장 많이 고려되는 석유회수증진기법 중 하나이다. Fig. 2.1은 일반적인 수공법과 폴리머주입법의 접촉효율을 상징적으로 나타낸 것으로, 석유보다 유동도가 높은 물은 석유보다 먼저 생산정까지 최단거리로 이동하려는 경향을 나타낸다. 물보다 유동도가 낮은 폴리머를 쓰면 이러한 경향은 감소하고 석유 뒤에서 마치 피스톤과 같이 석유를 생산정 쪽으로 밀어내

는 역할을 하여 석유 회수율을 높일 수 있다.

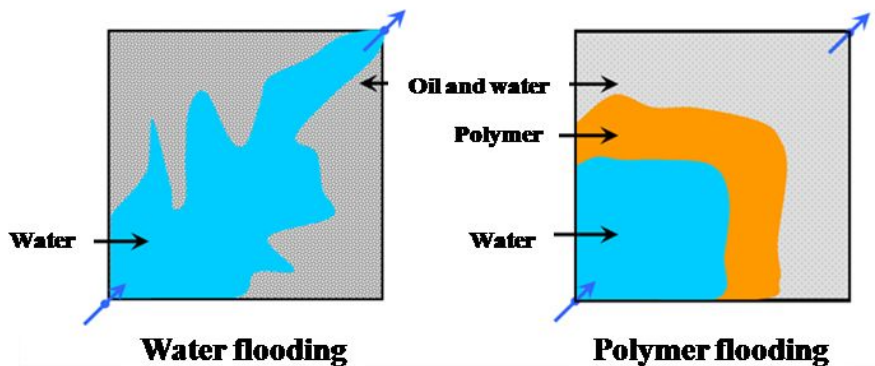


Fig. 2.1. Comparison of displacing fluid movement between water flooding and polymer flooding(임종세, 2007).

이러한 장점에도 불구하고 폴리머주입법은 다음과 같은 문제점이 있다 (Sorbie, 1991).

첫째, 폴리머 입자가 주변 환경에 의해 분해되어 점도가 낮아져서 폴리머주입법의 치환효율이 낮아질 수 있는 문제점이 있다. 폴리머 분해는 원인과 특성에 따라 세 가지로 분류할 수 있다.

1) 물리적 분해 : 높은 유량조건에서 폴리머 입자가 잘게 부서져 폴리머의 분자량이 낮아지는 현상으로 주입정 근처에서 자주 발생한다. 대부분의 폴리머는 분자량이 낮아지면 점도가 낮아져 폴리머주입법의 효율이 낮아질 수 있기 때문에 물리적 분해를 줄이기 위해 사용가능한 폴리머의 분자량을 제한한다.

2) 화학적 분해(chemical degradation) : 저류층의 온도가 높을 경우 열에 의해 폴리머 입자가 분해되거나 저류층에 존재하는 칼슘, 마그네슘, 산소 등의 이온들과 반응하여 점도가 감소하는 현상이다.

3) 생물적 분해(biological degradation) : 박테리아에 활동에 의해 폴리머 입자가 분해되는 현상으로 주변 온도가 낮거나 폴리머 수용액을 지상에서 보관할 때 자주 발생한다.

둘째, 주입된 폴리머 입자가 저류층에 정체하여 폴리머주입법 적용비용을 크게 높일 수 있는 문제점이 있다. 폴리머 정체는 원인 및 특성에 따라 세 가지로 분류할 수 있다.

1) 흡착(adsorption) : 폴리머 입자가 저류암 표면에 Van der Waales결합이나 수소결합으로 붙게 되는 비가역적 현상으로 저류층에 폴리머가 정체하는 주요인이다.

2) 물리적 정체(mechanical entrapment) : 공극의 크기가 작거나 저류암의 유체투과도가 낮아서 폴리머 입자가 저류층에 정체하는 현상으로 주입정 근처에서 자주 발생한다.

3) 수력학적 정체(hydrodynamic retention) : 폴리머 입자가 유동하다가 저류암에서 움푹 들어간 부분에 정체되어 유동하지 못하는 현상으로 유량에 따라 정체하는 폴리머 양이 변한다.

셋째, 폴리머 수용액의 점도가 높기 때문에 주입도(injectivity)가 낮다는 것이다. 폴리머용액의 점도가 높아질수록 폴리머의 주입압력은 높아지므로 일정 수준 이상의 폴리머 주입을 유지하기 위해서는 고압의 압축설비가 요구된다. 주입압력이 너무 높아지면 주입정 근처에서 불필요한 균열이 발생할 수 있으므로 적용 가능한 폴리머 농도를 제한해야 한다.

최근 이와 같은 문제점 중 폴리머 수용액의 주입도와 석유회수율을 향상시키고 물리적 분해를 줄이기 위해 pH에 따라 점도가 변하는 특성을 지닌 pH민감성 폴리머에 대한 연구가 이루어지고 있다.

제 2 절 pH 민감성 폴리머의 정의

pH 민감성 폴리머는 수용액 상태에서 pH가 변하면 긴 사슬형태인 폴리머 입자가 코일처럼 말리거나 펴지면서 점도가 변하는 폴리머로서 HPAM(hydrolyzed polyacrylamide)가 대표적이다(DOE, 2008). HPAM은 석유 업계에서 가장 많이 사용하는 폴리머 중 하나인 PAM(polyacrylamide)을 부분 또는 전부 가수분해 시켜 에틸렌 주분자 사슬(backbone chain)을 따라 PAM의 주성분인 아미노기(amino groups)를 카복실기(carboxyl groups)로 치환한 폴리머이다(Fig. 2.2).

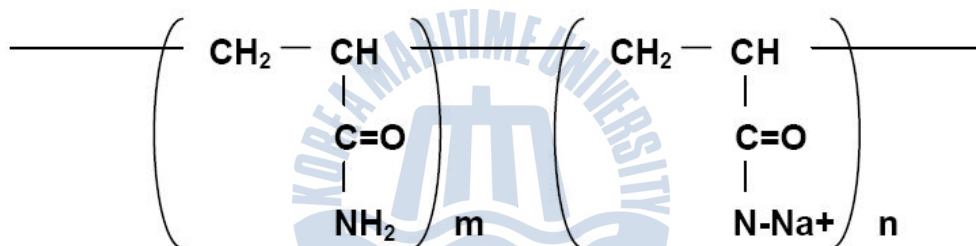


Fig. 2.2. Chemical structure of partially hydrolyzed polyacrylamide (DOE, 2008).

HPAM의 pH 민감성은 카복실기가 pH 조건에 따라 HPAM 용액에 용해되어 있는 염과 양성자를 교환하면서 발생한다. 높은 pH 조건에서는 카복실기가 양성자를 잃으면서 음전하로 대전되어 HPAM 입자 간에 강한 척력이 발생한다. 이로 인해 사슬형태인 HPAM의 입자가 펴지면서 용액의 점도를 높인다. 낮은 pH 조건에서는 카복실기가 양성자인 수소이온을 얻으면서 음전하가 약해져 HPAM 입자가 코일처럼 말리고 용액의 점도가 낮아진다.

제 3 절 pH 민감성 폴리머의 적용방법 및 장점

HPAM을 석유회수증진을 위해 현장에 적용하기 위해서 우선 pH 민감성 폴리머가 지나가게 될 저류층 구간의 pH를 낮추기 위한 산처리법을 수행해야 한다. 산처리법은 산을 혼합하여 pH를 낮춘 용액을 주입하는 방법인데 유정근처에서 시추이수 침투에 의해 증가한 표피인자를 낮추고 탄산염 광물을 용해시켜서 유체투과도를 높이기 위해 주로 사용하였다(Economides *et al.*, 1994).

그러나 pH 민감성 폴리머를 주입하기 전에 수행하는 산처리법의 주요 목적은 pH에 대한 민감성을 이용하여 폴리머의 점도를 낮추기 위해 적용한다. 산처리법 적용 후 pH 민감성 폴리머를 낮은 pH 상태에서 주입하면 낮은 점도상태에서 폴리머가 주입정과 거리가 멀리 떨어진 저류층 구간까지 이동할 수 있으므로 기존 폴리머주입법에 비해 주입성이 좋아진다. 즉, 주입압력이 낮아지기 때문에 주입에 필요한 펌프와 동력에 의한 비용을 절감할 수 있고 적용이 가능한 폴리머의 농도 범위가 더 넓어진다. 또한, 폴리머 입자가 코일처럼 말린 형상으로 수축한 상태이며 점도가 낮으므로 주입정 근처에서 압력 감소 정도가 기존 폴리머주입법에 비해 낮기 때문에 폴리머의 물리적 분해를 줄일 수 있고 사용가능한 폴리머 최대 분자량이 기존 폴리머주입법에 비해 높아진다. 시간이 지나면 산처리법으로 사용한 산은 저류층에 존재하는 광물과 반응하여 낮아졌던 저류층의 pH가 다시 높아진다. 이와 함께 폴리머 수용액의 점도가 높아지고 유동도가 낮아져 석유의 회수량을 증진시킬 수 있다.

유체투과도에 대한 불균질성이 매우 높은 저류층의 경우, 수공법으로는 균열과 같은 유체투과도가 높은 구간의 석유를 집중적으로 회수하므로 유체투과도가 낮은 구간의 석유는 많은 양이 남아있게 된다. 점도가 낮은 상태에서 pH 민감성 폴리머는 유체투과도가 높은 구간으로 흐르다가 저류암에 흡착하여 pH와 함께 점도가 높아지면서 폴리머가 유동하던 저류층 구간의 유체투과도를 크게 낮춘다. pH 민감성 폴리머를 주입한 후에 석유를 치환할 유체를 주입하면 유체

투과도가 감소한 저류층 구간으로 유동이 집중하지 않기 때문에 집속효율이 높아지고 석유의 회수량을 증진시킬 수 있다.

이러한 장점을 지닌 pH 민감성 폴리머를 저류층에 적용하기 위해서는 폴리머주입법이 설정한 목표에 맞게 수행할 수 있도록 설계하여야 한다. 이를 위해서는 점도를 정확히 추정할 수 있어야 적용된 폴리머주입법의 효율을 산출하여 적절히 계획할 수 있는데 폴리머주입법의 설계 및 평가는 대부분 시뮬레이터를 활용하므로 적용가능한 점도 모델이 필요하다.



제 3 장 기존 폴리머 점도 추정 방법

제 1 절 일반 폴리머의 점도 추정 방법

점도는 유동하는 유체에 작용하는 내부저항으로 정의할 수 있고(Sutton *et al.*, 2006) 종류는 Table 3.1과 같다. 여기서 η_s 는 용매의 점도, C 는 폴리머의 농도를 나타낸다.

Table 3.1. Classification of viscosity(Sorbie, 1991).

Quantity	Symbol/ definition	Units		
		Field	cgs	SI
Viscosity	η	cP	P	Pa·s
Relative viscosity	$\eta_r = \frac{\eta}{\eta_s}$	Dimensionless		
Specific viscosity	$\eta_{sp} = \eta_r - 1$	Dimensionless		
Reduced viscosity	$\eta_R = \frac{\eta_{sp}}{C}$	cm ³ /g	dm ³ /g	m ³ /kg
Inherent viscosity	$\eta_I = \frac{\ln \eta_r}{C}$	cm ³ /g	dm ³ /g	m ³ /kg
Intrinsic viscosity	$[\eta] = \lim_{C \rightarrow 0} \eta_R$	cm ³ /g	dm ³ /g	m ³ /kg

점도는 모세관형 점도계, cone&plate 점도계, couette 점도계 등으로 측정가능 하나 폴리머 분자량, 농도, 전단율과의 관계를 통해 점도를 추정할 수 있는 여러 가지 모델이 있다(Table 3.2). Sorbie(1991)에 의하면 급수법칙(power-law) 모델은 필요 변수가 적고 간단하기 때문에 가장 많이 사용하는 모델이고,

Carreau 방정식은 다양한 폴리머의 점도 추정이 가장 정확한 장점이 있다.

Table 3.2. Various viscosity models(Sorbie, 1991).

Name	Analytical expresstion
Bingham model	$\eta = \mu_o + \frac{\tau_o}{\gamma}$
Carreau equation	$\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_o - \eta_\infty} = [1 + (\lambda\gamma)^2]^{(n-1)/2}$
Eyring model	$\eta = t_o \tau_o \left(\frac{\sinh^{-1} t_o \gamma}{t_o \gamma} \right)$
Huggins equation	$\frac{\eta_{sp}}{C} = [\eta] + k' [\eta]^2 C$
Kraemer equation	$\frac{\ln \eta_r}{C} = [\eta] - k'' [\eta]^2 C$
Lyons and Tobolsky model	$\frac{\eta_{sp}}{C[\eta]} = \exp\left(\frac{k_L [\eta] C}{1 - b}\right)$
Mark-Houwink equation	$[\eta] = K' M^a$
Martin equation	$\log\left(\frac{\eta_{sp}}{C}\right) = \log [\eta] + k_L [\eta] C$
Power-law model	$\eta = K \gamma^{n-1}$
Reiner model	$\frac{\eta_o}{\eta} = 1 + \left(\frac{\tau}{\tau_{1/2}}\right)^{a-1}$

여기서 각 점도모델의 입력변수는 Table 3.3에 나타내었다.

Table 3.3. Input parameters for viscosity models(Sorbie, 1991).

Symbol	Description
Alphabetic symbols	
a	Constant of polymer solution at a given temperature
b	Constant
C	Polymer concentration
K	Consistency index
K_L	Constant
K'	Constant of polymer solution at a given temperature
k'	Huggins constant
k''	Constant of polymer solution
M	Molecular weight
n	Power-law exponent
t_o	Characteristic time
Greek symbols	
γ	Shear rate
η	Viscosity
η_o	Zero shear rate viscosity
η_r	Relative viscosity
η_{sp}	Specific viscosity
η_∞	Infinite shear limit viscosity
$[\eta]$	Intrinsic viscosity
λ	Time constant
μ_o	Constant with dimensions of viscosity
τ_o	Characteristic stress
$\tau_{1/2}$	Value of shear stress at $\eta = \eta_o/2$

Table 3.2에 나타낸 점도모델들은 입력 변수 중에 pH, 가수분해정도 등이 포함되어 있지 않으므로 pH변화에 상관없는 일반 폴리머에만 적용할 수 있다. 또한, pH 민감성 폴리머는 pH, 염도, 농도, 분자량, 전단율, 가수분해정도에 따라 점도가 수 배 이상 변할 수 있기 때문에 기존 점도 추정 모델로는 정확한 점도 추정이 어려우므로 새로운 점도모델이 개발되어야 한다(Huh *et al.*, 2005).

제 2 절 HCS 모델을 이용한 pH 민감성 폴리머 점도 추정

pH 민감성 폴리머의 점도 추정을 위해 Huh 등(2005)과 Choi(2008)가 개발한 HCS 모델은 기존 점도모델들을 수정 및 결합하여 폴리머 점도를 계산할 수 있다(Fig. 3.1). 이 점도 모델에 사용된 관계식들은 다음과 같다.

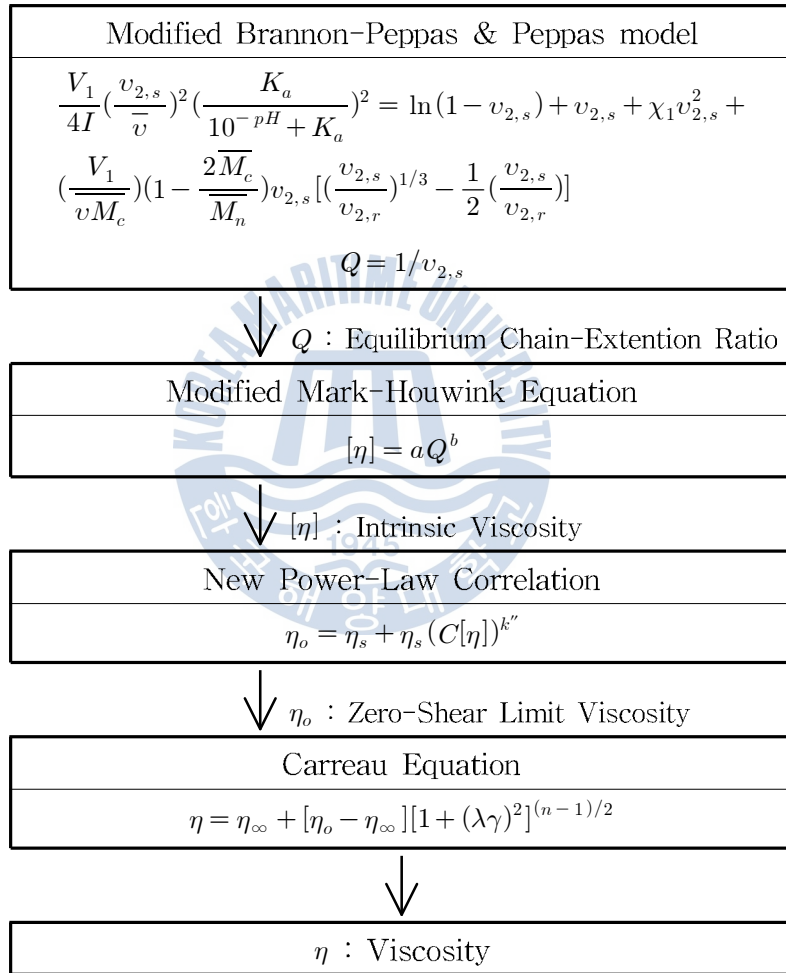


Fig. 3.1. A flow chart for the viscosity modeling procedure of HPAM polymer(Choi, 2008).

1) Brannon-Peppas & Peppas 모델

Brannon-Peppas & Peppas 모델은 Flory-Huggins의 열역학 이론과 고무 탄성(rubber elasticity) 이론, 이온 반응(ionic interaction) 이론을 기반으로 pH, 폴리머 분자량, 가수분해정도, 염도에 따라 변하는 폴리머의 평형사슬확장도(equilibrium chain-extension ratio)를 계산할 수 있다(식 (3.2.1), 식 (3.2.2)).

$$\begin{aligned} \frac{V_1}{4I} \left(\frac{v_{2,s}}{\bar{v}} \right)^2 \left(\frac{K_a}{10^{-pH} + K_a} \right)^2 = \ln(1 - v_{2,s}) + v_{2,s} + \chi_1 v_{2,s}^2 + \\ \left(\frac{V_1}{vM_c} \right) \left(1 - \frac{2\bar{M}_c}{M_n} \right) v_{2,s} \left[\left(\frac{v_{2,s}}{v_{2,r}} \right)^{1/3} - \frac{1}{2} \left(\frac{v_{2,s}}{v_{2,r}} \right) \right] \end{aligned} \quad (3.2.1)$$

V_1 : molar volume of solvent

I : ionic strength of solvent

$v_{2,s}$: polymer volume fraction in the swollen network

\bar{v} : specific molar volume of dry polymer

K_a : dissociation constant of ionizable groups of polymer

χ_1 : polymer-solvent interaction parameter

\bar{M}_c : average molecular weight between crosslinks

\bar{M}_n : average molecular weight of polymer before crosslinking

$v_{2,r}$: polymer volume fraction in the relaxed state

$$Q = 1/v_{2,s} \quad (3.2.2)$$

Q : equilibrium chain-extension ratio

2) 수정된 Mark-Houwink 방정식

고유점도(intrinsic viscosity)는 폴리머의 입자 크기에 밀접한 관련이 있기 때문에 pH 민감성 폴리머 점도 추정을 위해 적용되었다. Mark-Houwink 방정식에서 분자량을 평형사슬확장도로 수정하였기 때문에 Brannon-Peppas & Peppas 모델로 도출한 평형사슬확장도로 폴리머의 고유점도를 도출할 수 있다 (식 (3.2.3)).

$$[\eta] = aQ^b \quad (3.2.3)$$

a : polymer specific empirical constant

b : polymer specific empirical constant

$[\eta]$: intrinsic viscosity

3) 수정된 급수법칙 유체 관계식

고유점도와 폴리머 농도를 이용하여 zero-shear limit 점도를 계산하기 위해 수정된 급수법칙 유체 관계식이 개발되었다(식 (3.2.4)).

$$\eta_o = \eta_s + \eta_s (C[\eta])^{k''} \quad (3.2.4)$$

η_o : zero-shear limit viscosity

η_s : solvent viscosity

C : polymer concentration

k'' : polymer-specific constant

4) Carreau 방정식

전단율에 따른 폴리머 점도를 계산하기 위해 기존 점도 추정 모델인 Carreau 방정식을 적용하였다(식 (3.2.5)).

$$\eta = \eta_{\infty} + [\eta_o - \eta_{\infty}][1 + (\lambda\gamma)^2]^{(n-1)/2} \quad (3.2.5)$$

η_{∞} : high-shear limit viscosity

γ : shear rate

λ : time constant

n : power-law exponent

식 (3.2.6)은 Choi(2008)가 도출한 관계식으로써 경험변수, 폴리머 농도, 고유 점도를 이용하여 급수법칙 지수(power-law exponent)를 계산할 수 있다.

$$(n-1) = e_1 + e_2 \ln(C[\eta]) \quad (3.2.6)$$

e_1, e_2 : empirical parameter

식 (3.2.7)은 Lange와 Huh(1994)가 도출한 관계식으로써 폴리머 농도와 고유 점도를 이용하여 time constant를 계산할 수 있다.

$$\lambda = e_3 + e_4 (C[\eta])^{e_5} \quad (3.2.7)$$

e_3, e_4, e_5 : empirical parameter

제 3 절 HCS 모델의 문제점

HCS 모델은 기존 관계식들을 수정 및 활용하여 pH 민감성 폴리머의 점도를 추정할 수 있는 유일한 모델이지만 다음과 같은 문제점이 있다.

첫째, 점도 추정에 필요한 변수가 총 21개이며 그 중 7개는 경험변수이다 (Table 3.4). 이러한 변수를 도출하기 위해서는 실험을 수행해야 하는 문제가 있다.

둘째, HCS 모델은 특정 폴리머를 대상으로 한 실험으로 모델을 검증하였다 (Huh *et al.*, 2005; Choi *et al.*, 2006; Choi *et al.*, 2009). 폴리머의 종류가 매우 다양함을 고려해 볼 때 다른 폴리머에도 적용할 수 있도록 입력변수에 대한 확장성이 있어야 하나 HCS 모델은 복잡하고 사용가능한 변수가 정해져있는 수학적 관계식의 특성으로 인해 새로운 변수에 대한 확장성이 낮다.

셋째, 폴리머 수용액의 염도가 3 wt.% 이상이거나 칼슘, 마그네슘과 같은 2가 양이온 존재 시 추정한 점도의 정확도가 매우 떨어지는 활용성 문제가 있다. 거의 모든 저류층에서 2가 양이온이 존재하고 해수의 평균 염도가 3 wt.% 이므로 실제 현장에 적용하면 점도 추정에 많은 오류가 생길 수 있다.

이와 같은 문제점을 해결하고 보다 쉽게 점도를 추정하기 위해서 새로운 모델의 개발이 필요할 것이다. 이 연구에서는 인공지능망기법을 이용하여 적은 변수만으로 신뢰성있는 pH 민감성 폴리머 점도 추정 모델을 개발하고자 한다.

Table 3.4. Parameters for HCS model(Choi, 2008).

No.	Symbol	Description
Modified Brannon-Peppas & Peppas Model		
1	V_1	Molar volume of solvent
2	I	Ionic strength of solvent
3	$v_{2,s}$	Polymer volume fraction in the swollen network
4	\bar{v}	Specific molar volume of dry polymer
5	K_a	Dissociation constant of ionizable groups of polymer
6	χ_1	Polymer-solvent interaction parameter
7	\overline{M}_c	Average molecular weight between crosslinks
8	\overline{M}_n	Average molecular weight of polymer before crosslinking
9	pH	pH
Modified Mark-Houwink Equation		
10	a	Polymer specific empirical constant
11	b	Polymer specific empirical constant
New Power-Law Correlation		
12	η_s	Solvent viscosity
13	C	Polymer concentration
14	k''	Polymer-specific constant
Carreau Equation		
15	η_∞	High-shear limit viscosity
16	γ	Shear rate
17~21	$e_1 \sim e_5$	Empirical parameters

제 4 장 pH 민감성 폴리머 점도 추정을 위한 인공신경망 점도 추정 모델 개발

제 1 절 인공신경망기법의 개요

인간의 뇌는 뉴런(neuron)으로 불리는 수많은 신경계의 최소단위로 이루어져 있으며 각각의 뉴런은 시냅스(synapse)로 불리는 연결부위를 통해 수백에서 수천 개의 다른 뉴런들과 연결되어 있다. 하나의 뉴런은 수상돌기(dendrite)를 통해 자신과 연결된 다른 뉴런들로부터 전기·화학적 신호들을 받아들이며 이러한 신호들을 세포체(cell body)에서 중합한다. 중합한 값이 임계치(threshold), 즉 뉴런 고유의 한계치보다 커지면 뉴런은 활성화되며 축삭돌기(axon)를 통해 인접 뉴런에 자신의 출력을 전달한다(Fig. 4.1). 뉴런간의 정보교환은 각각 병렬적으로 수행되며 이러한 정보교환 기능은 학습에 의하여 향상된다(이종용, 2008).

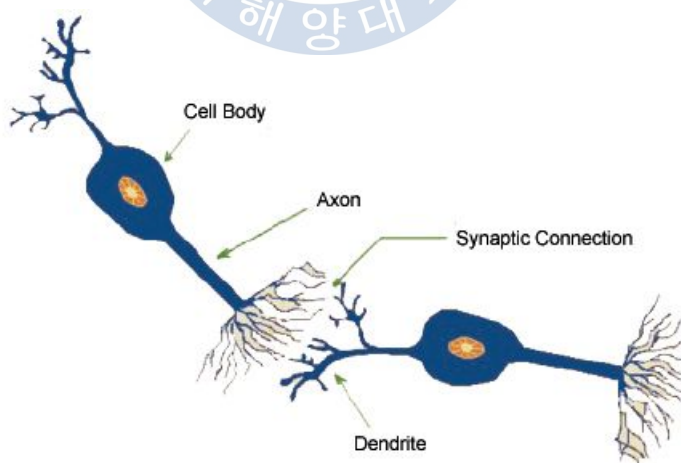


Fig. 4.1. Schematic diagram of the biological neuron(Mohaghegh, 2000).

인공신경망기법은 이러한 인간 두뇌의 신경세포 또는 뉴런(neuron)을 모방하여 컴퓨터 시뮬레이션으로 표현하는 것을 목표로 하는 수학 모델로써 노드(node) 또는 처리요소(processing element)라고 하는 다수의 뉴런들이 층 구조 형태로 구성되어 있다. 여기서 Fig. 4.2는 뉴런의 기능을 모형화한 그림이다. 입력신호는 각 뉴런에 입력된 외부자극이며, 시냅스 가중치(synaptic weight)는 각 뉴런에 해당하는 연결강도, 입력 가중합(summing junction)은 입력된 외부 자극의 가중합이다. 이것이 활성화 함수의 조건에 만족하면 출력하고 그렇지 않은 경우에는 연결강도를 계속 변화시키면서 학습시킨다. 따라서 어떤 활성화 함수를 선택하느냐에 따라 뉴런의 출력이 달라질 수 있다.

활성화 함수의 종류로는 항등 함수, 계단 함수, 시그모이드 함수 등이 있으며 항등 함수는 양극성의 선형 연속 함수로써 뉴런의 입력 가중합이 그대로 출력된다. 계단 함수는 단극성 또는 양극성의 이진 함수이며, 입력 가중합이 임계치보다 작은 경우에는 뉴런의 출력이 0이며 입력 가중합이 임계치보다 크거나 같은 경우에는 뉴런의 출력이 1이다. 시그모이드 함수는 형태가 S자 모양이므로 S형 곡선이라고도 한다. 이 함수는 단극성 또는 양극성의 비선형 연속함수로서 어떠한 형태의 입력값도 0과 1, 또는 -1과 1 사이의 값으로 표현할 수 있는 장점이 있다.

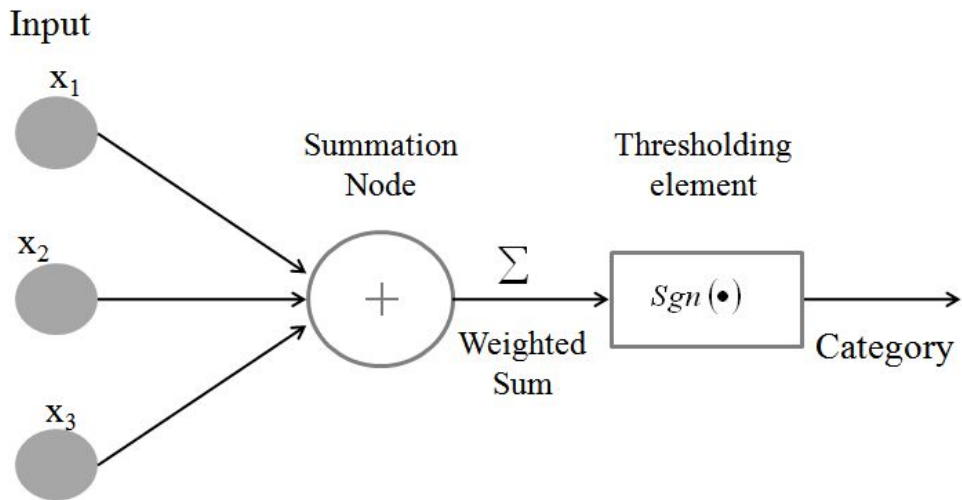


Fig. 4.2. Single unit diagram for artificial neuron(유현중, 2009).

인공신경망의 구조는 신경망의 성능에 상당한 영향을 미치는데 Fig 4.3에 나타낸 바와 같이 순방향 신경망(feed-forward network)과 순환 신경망(recurrent network)으로 구분한다.

순방향 신경망은 계층 수에 따라 단층 구조와 다층 구조로 구분한다. 단층 구조 신경망(single-layer feedforward networks)은 입력층(input layer)과 출력층(output layer)으로만 구성되는 가장 단순한 구조이며 다층 구조 신경망(multi-layer feedforward networks)은 입력층, 한 개 이상의 은닉층(hidden layer), 출력층을 가지고 있는 구조로 이루어져 있다. 일반적으로 은닉층이 하나만 있는 3계층 신경망 구조가 사용되지만 은닉층을 추가함에 따라 좀 더 나은 결과를 얻을 수 있기 때문에 여러 개의 은닉층을 사용하는 다층 구조 신경망도 자주 사용한다.

순환 신경망(recurrent network) 구조는 신경망의 출력이 입력층으로 궤환되어 새로운 출력이 나오는 형태이다. 순환 신경망 구조를 가진 것으로는 순환연상 메모리와 Hopfield Net, bidirectional associative memory(BAM)이 있다. 신경망의 구조 자체에도 학습시간에 상당한 영향을 미치므로 신경망 구조를 구성

하는데 있어 특정 응용분야에 따라 최적의 상태로 구성해야 한다.

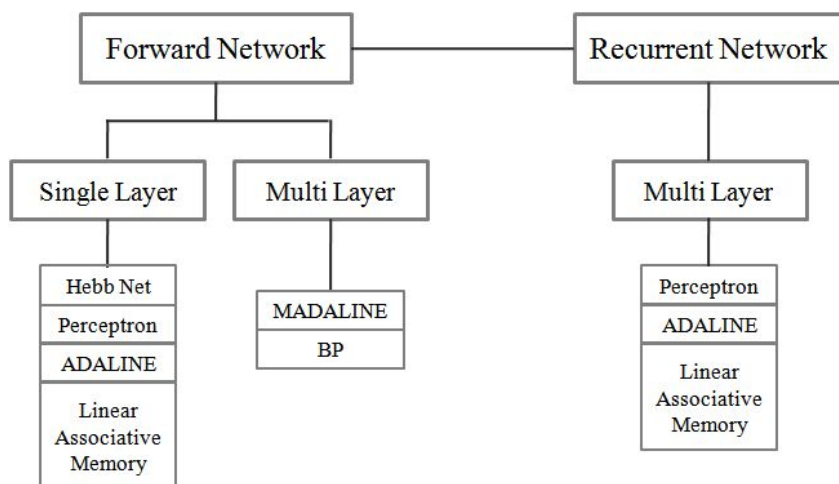


Fig. 4.3. Classification of artificial neural networks based on their structures(유현중, 2009).

이러한 인공신경망 구조는 단순히 생각하면 복잡할수록, 즉 층의 수가 많거나 각각의 층에 많은 뉴런이 존재할수록 신경망의 성능이 개선될 것으로 여겨지나 실제로는 오히려 학습이 되지 않는 경우도 있으며 학습이 되었다고 하더라도 많은 연산으로 인해 처리시간이 느려지는 단점이 있으므로 은닉층의 수와 각 층의 뉴런의 수를 변경하면서 최적의 값을 찾는 과정이 필요하다(오창석, 2000). 여기서 학습이란 응용분야의 목적에 맞게 뉴런간의 연결강도를 변경시켜 적응해 나가는 과정으로 학습방법은 크게 지도학습(supervised learning)과 자율학습(unsupervised learning)으로 분류할 수 있다. 지도학습이란 학습 자료의 입력과 그에 대응하는 출력을 목표치로 입력하여 학습시키는 방법으로, 출력 값이 주어진 입력에 따른 목표치의 오차범위 이내로 산출될 때까지 연결강도를 조정한다. 이 형태의 대표적인 모델로는 Perceptron과 Hopfield, 오류역전파(backpropagation, BP) 등이 있다. 자율학습이란 목표치 없이 학습 자료만을 입력하여 스스로 연결강도를 조정하는 학습법으로, 비슷한 입력패턴들이 같은

출력으로 학습되도록 연결강도를 변경한다. 대표적인 알고리즘으로는 Kohonen의 경쟁학습(competitive learning)과 Grossberg의 ART(adaptive resonance theory) 모델 등이 있다.

이와 같은 특성을 지닌 인공신경망은 다음과 같은 장점이 있다(Ertekin and Silpngarmlers, 2005).

1) 뉴런간의 연결강도를 변화시키는 학습과정을 통해 입력 자료가 손상되거나 완전하지 않더라도 패턴인식 및 비선형적으로 나타나는 특징들을 탐지할 수 있다.

2) 적응학습(adaptive learning)특성에 의해 사전지식이 없는 상태에서 입력 자료와 출력 자료의 패턴을 파악할 수 있다.

3) 많은 양의 자료를 빠른 시간 내에 병렬로 처리할 수 있다.

이러한 장점으로 인해 다양한 석유공학 분야에서 인공신경망기법을 사용해 왔다(Table 4.1).

이 연구에서는 석유회수증진을 위해 이용하는 pH 민감성 폴리머의 점도 추정을 위해 인공신경망기법을 사용하고자 한다.

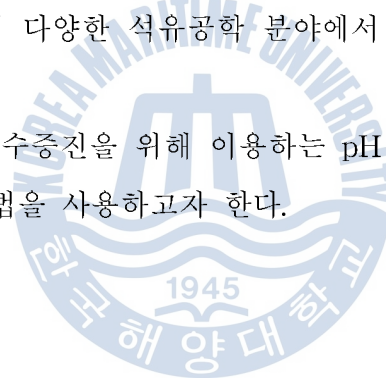


Table 4.1. ANN application in the petroleum industry(Saputelli *et al.*, 2002).

Reservoir Characterization
<ul style="list-style-type: none"> • Formation permeability/porosity prediction • Virtual electric logs & magnetic resonance logs • Reservoir stochastic modeling • Reconstruction of Sor distribution for water flooding • Lithofacies identification • Estimation of productivity • Reservoir zone identification
Optimal Design of Stimulation Treatment
<ul style="list-style-type: none"> • Post-fracture deliverability prediction • Optimal candidate selection
Virtual Measurement in the Oil Field
<ul style="list-style-type: none"> • Prediction of PVT properties • Prediction of bottom-hole pressure • Prediction of hold-up • Prediction of flow regime • Well testing analysis
Optimization of Field Operation
<ul style="list-style-type: none"> • Resource allocation, Pressure and production prediction • Surface hydraulic simulation for production optimization • Well placement and location • Water flooding optimization

제 2 절 학습 자료 및 학습 알고리즘

인공신경망을 활용하기 위해서는 신경망의 학습이 우선적으로 선행되어야 한다. 학습에 사용된 자료는 DOE보고서(2008)에서 사용가능한 모든 자료로서 HPAM의 분자량, 가수분해정도, 농도, HPAM 용액의 pH, 염도, 실험조건인 전단율과 점도계 ARES LS-1(TA instrument)로 측정한 HPAM 용액의 점도이다. 점도를 제외한 학습 자료로 선택한 각 요소는 다음과 같다.

1) pH : Fig. 4.4에 나타낸 바와 같이 pH가 높아질수록 HPAM 입자가 퍼지면서 점도가 증가하는 경향이 있으므로 점도 추정을 위해 반드시 필요한 물성이다.

2) 전단율 : 석유회수증진기법에 사용되는 대부분의 폴리머는 전단율이 높아질수록 전반적으로 점도가 낮아지는 의가소성(shear thinning) 유동특성을 지닌다. Fig 4.4에 나타낸 바와 같이 HPAM도 의가소성 유동특성을 보이므로 전단율은 점도 추정을 위해 필요한 변수이다.

3) 폴리머 농도 : 폴리머의 농도가 증가할수록 용액의 단위부피에 존재하는 폴리머 입자수가 증가하므로 입자간의 마찰효과(frictional effect)에 의해 폴리머 수용액의 점도가 증가한다. Fig 4.5에 나타낸 바와 같이 HPAM도 농도가 높아질수록 점도가 높아지는 경향이 있다.

4) 염도 : 수용액상태에서 존재하는 염의 양이온이 HPAM 입자가 음전하로 대전되는 것을 막기 때문에 HPAM 용액의 염도가 높아질수록 점도가 낮아진다(Fig. 4.6). 그래서 HPAM 용액의 염도도 점도 추정에 필요한 변수이다.

5) 가수분해정도 : 가수분해정도가 높을수록 pH에 대한 민감성을 발생시키는 카복실기의 비율이 높아지기 때문에 HPAM의 pH 민감성이 더 높아지는 경향이 있다(Fig. 4.7). 또한, 제조사로부터 자료 확보가 용이하므로 가수분해정도를 학습 자료로 선택하였다. 가수분해정도가 100%인 HPAM이 25~30%의 HPAM의 점도보다 낮은 이유는 주 분자 사슬에 음전하가 너무 강하게 대전되

어 있기 때문이다(DOE, 2008).

6) 폴리머 분자량 : Sorbie(1991)에 의하면 일반적으로 폴리머의 분자량이 높아질수록 점도가 높아지는 경향이 있고 HPAM 역시 같은 유동특성을 나타낸다(Fig. 4.8). 또한, 제조사로부터 자료 확보가 용이하므로 폴리머 분자량을 학습 자료로 선택하였다.

DOE(2008)보고서에서 지금까지의 총 6개 물성 외에 HPAM 입자가 퍼진 상태에서 다시 코일처럼 말리는 동안 걸리는 시간을 의미하는 relaxation time이 있다. 그러나 relaxation time은 여러 조건에 따라 변하고 실험으로 측정해야 하는 물성이고 학습된 인공신경망을 통해 점도를 추정하기 위해 필요한 입력변수를 확보할 수 없으므로 relaxation time은 학습 자료에서 제외하였다.

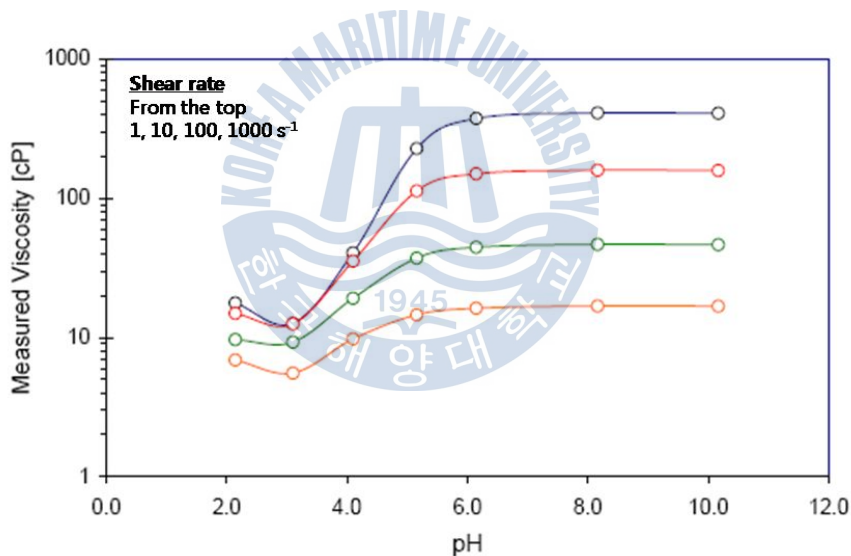


Fig. 4.4. Viscosity measurements for 0.5% HPAM prepared in 0.5% sodium chloride brine as a function of pH(DOE, 2008).

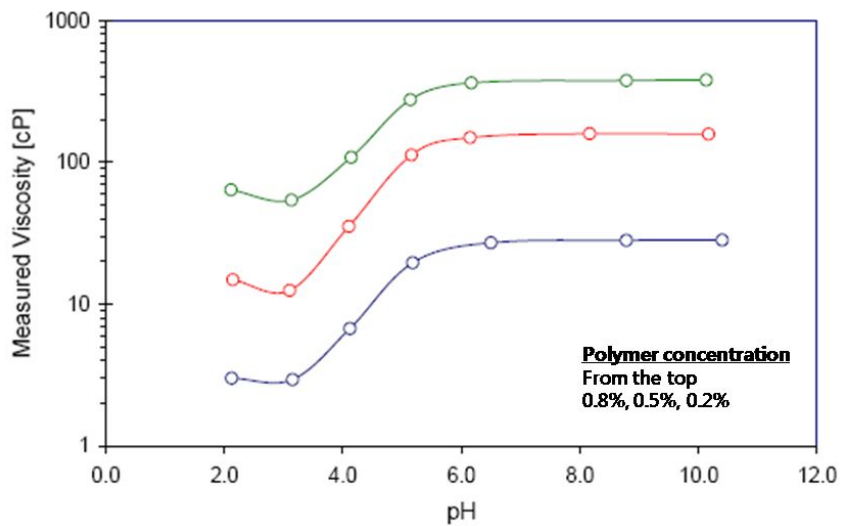


Fig. 4.5. Influence of HPAM concentration on measured viscosity as a function of pH for HPAM prepared in 0.5% sodium chloride brine at shear rate of 10^{-1} (DOE, 2008).

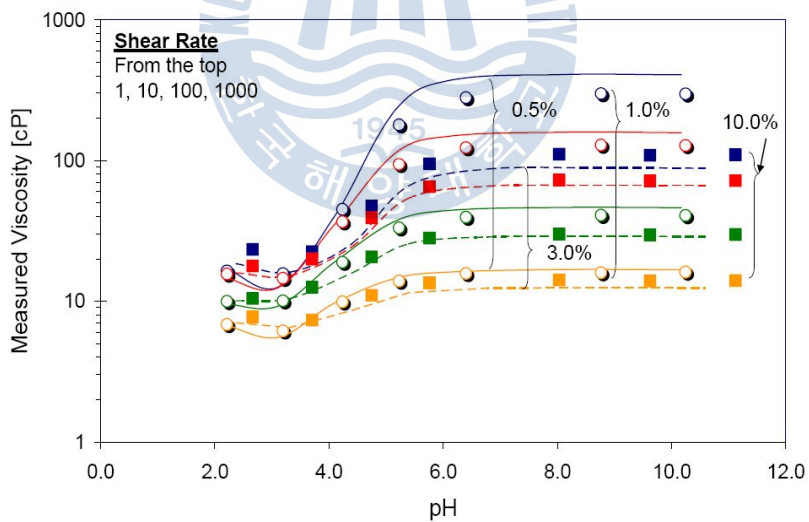


Fig. 4.6. Influence of salinity on measured viscosity as a function of pH for 0.5% HPAM prepared in sodium chloride brine (DOE, 2008).

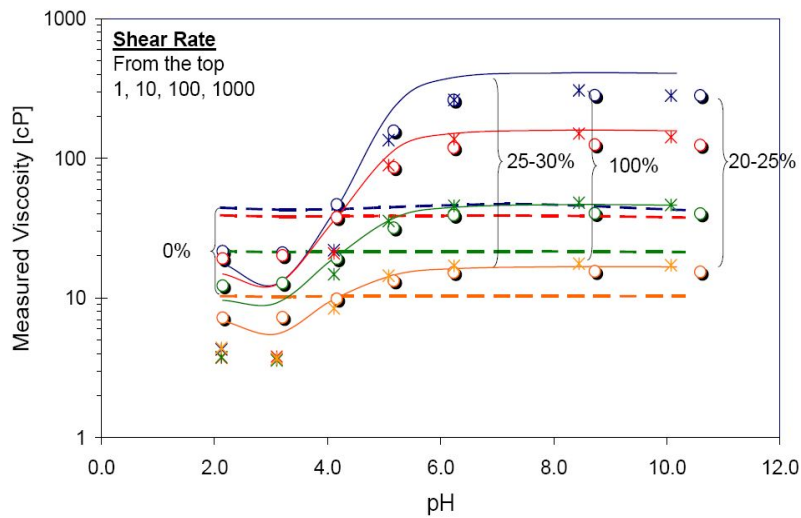


Fig. 4.7. Influence of degree of hydrolysis on measured viscosity as a function of pH for 0.5% HPAM prepared in 0.5% sodium chloride brine (DOE, 2008).

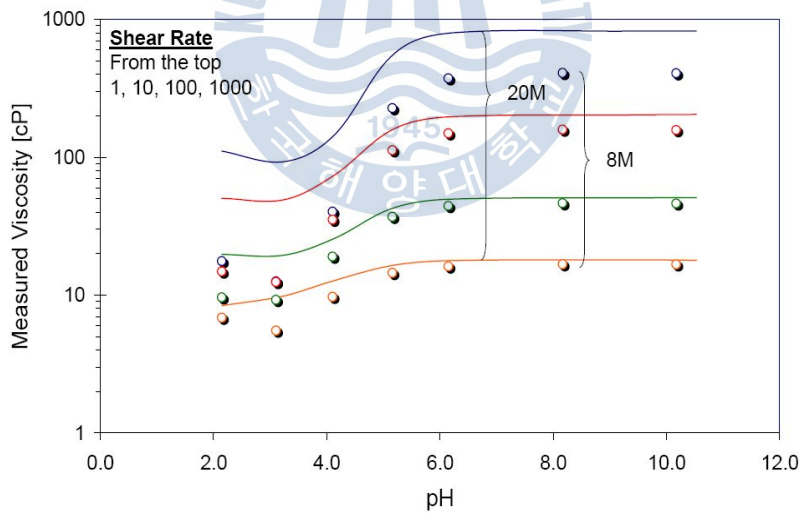


Fig. 4.8. Influence of molecular weight on measured viscosity as a function of pH for 0.5% HPAM prepared in 0.5% sodium chloride brine (DOE, 2008).

실험으로 측정한 HPAM의 점도자료(DOE, 2008)는 Table 4.2에 나타낸 바와 같이 총 224개의 자료를 8개의 data set으로 나누었고 각 data set은 28개의 자료로 구성하였다.

Table 4.2. Measured viscosity data set for ANN training(DOE, 2008).

No. of data set	Molecular weight (M/Dalton)	Degree of hydrolysis (%)	Salinity (% NaCl)	Polymer concentration (%)	pH	Shear rate (s ⁻¹)
Flopaam3330S					2~10	1, 10, 100, 1000
1	8	25~30	0.5	0.5		
2	8	25~30	0.5	0.2		
3	8	25~30	0.5	0.8		
4	8	25~30	1	0.5		
5	8	25~30	3	0.5		
Flopaam2330S						
6	8	20~25	0.5	0.5		
ALP99VHM						
7	8	100	0.5	0.5		
Flopaam3630S						
8	20	25~30	0.5	0.5		

인공신경망의 학습방법은 출력 목표치가 실험으로 측정한 점도 값이므로 지도학습을 선택하였고 그 중에 출력층의 오차 신호를 이용하여 은닉층과 출력층 간의 연결강도를 변경하는 한편, 출력층의 오차 신호를 은닉층에 역전파하여 입력층과 은닉층과의 연결강도를 변경하는 오류역전파 신경망을 사용하였다. 지금까지 여러 학습 알고리즘이 개발되었지만 목적에 따른 선정기준이 정해지지 않았으므로 pH 민감성 폴리머 점도 추정이 목적인 이 연구에 맞게 설정한 학습 알고리즘 선정 순서는 다음과 같다.

- 1) 은닉층의 뉴런 수와 활성화 함수를 바꾸면서 각 학습 알고리즘과 실험결과 자료로 인공신경망을 학습시킨다.
- 2) 학습된 인공신경망으로 추정한 점도와 학습 자료의 선형 회귀분석을 통해 직선의 방정식을 도출한다.
- 3) 각 학습 알고리즘으로 산출한 직선의 방정식과 R값을 비교한다(Table 4.3).

Table 4.3. Linear regression analysis for estimated viscosity of ANN viscosity model trained by various training algorithms.

Training algorithm	Linear equation	R-value
BFGS quasi-Newton backpropagation	$Y=0.94X+0.053$	0.9723
Conjugate gradient backpropagation with Fletcher-Reeves updates	$Y=0.95X+0.086$	0.9705
Conjugate gradient backpropagation with Polak-Ribière updates	$Y=0.97X+0.047$	0.9715
Conjugate gradient backpropagation with Powell-Beale restarts	$Y=0.97X+0.039$	0.9724
Levenberg-Marquardt backpropagation	$Y=1X+0.0031$	0.9966
One-step secant backpropagation	$Y=0.96X+0.05$	0.9559
Scaled conjugate gradient backpropagation	$Y=0.86X+0.22$	0.9016

선형 방정식의 기울기와 상관계수가 1, y 절편이 0에 가까울수록 인공신경망의 학습이 잘 되었다고 판단할 수 있는데 Table 4.3에 나타낸 바와 같이 여러 알고리즘 중 다양한 공학 분야에서 함수 근사화 문제에 많이 사용되고 있는 대표적인 알고리즘 중 하나인 Levenberg-Marquardt 오류역전파가 학습 알고리즘으로써 사용하기에 가장 적합한 것을 알 수 있다.

제 3 절 인공신경망 점도 추정 모델 구조

인공신경망 점도 모델의 설계 및 학습을 위해 MathWorks®의 MATLAB 7 Neural Network Toolbox를 사용하였다. 이 연구에서 pH 민감성 폴리머 점도 추정을 하기 위해 설계한 인공신경망 구조는 입력층 1개, 은닉층이 2개, 출력층 1개로 구성된 다층 구조 신경망이다. 입력층에는 pH 민감성 폴리머 점도에 영향을 미치는 폴리머 수용액의 pH, 폴리머 농도, 염도, 가수분해정도, 분자량, 점도측정 조건인 전단율로 총 6개의 뉴런을 배치하였다. 2개의 은닉층에는 각 5개의 뉴런을 배치하였고 출력층에는 점도만을 추정하는 1개의 뉴런을 배치하였다(Fig. 4.9). 또한, 입력층과 첫 번째 은닉층 사이, 첫 번째 은닉층과 두 번째 은닉층 사이는 양극성 시그모이드 함수를, 두 번째 은닉층과 출력층 사이에는 선형 함수를 적용하였다.

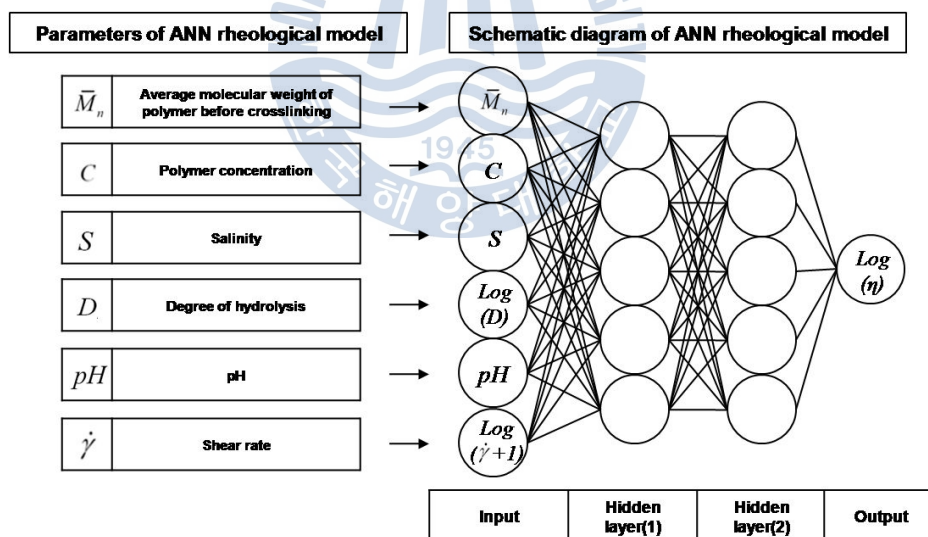


Fig. 4.9. Structure of ANN viscosity model of pH-sensitive polymer and its parameters

제 4 절 인공신경망 점도 추정 모델 검증

개발한 인공신경망 점도 추정 모델의 검증을 위해 실험 측정값과 인공신경망 점도 모델, HCS 모델로 추정한 점도를 비교하였다. HCS 모델로 점도를 추정하기 위한 방법은 부록에 나타내었다.

Fig. 4.10은 모든 data set 중 기준으로 설정한 data #1의 점도 측정 및 추정 자료로써 인공신경망 점도 모델은 pH가 높아지면서 비선형적으로 높아지는 폴리머의 점도를 추정하는 것을 확인할 수 있다. 또한, HCS 모델과는 달리 인공신경망 점도 모델은 pH 3에서 점도가 낮아지는 현상을 파악 및 추정하였다. 그러나 전단율이 1이고 pH가 4 이상일 때 인공신경망 점도 모델로 추정한 점도 곡선이 HCS 모델에 의한 곡선보다 측정점에서 멀리 떨어져 있는 것을 확인할 수 있다.

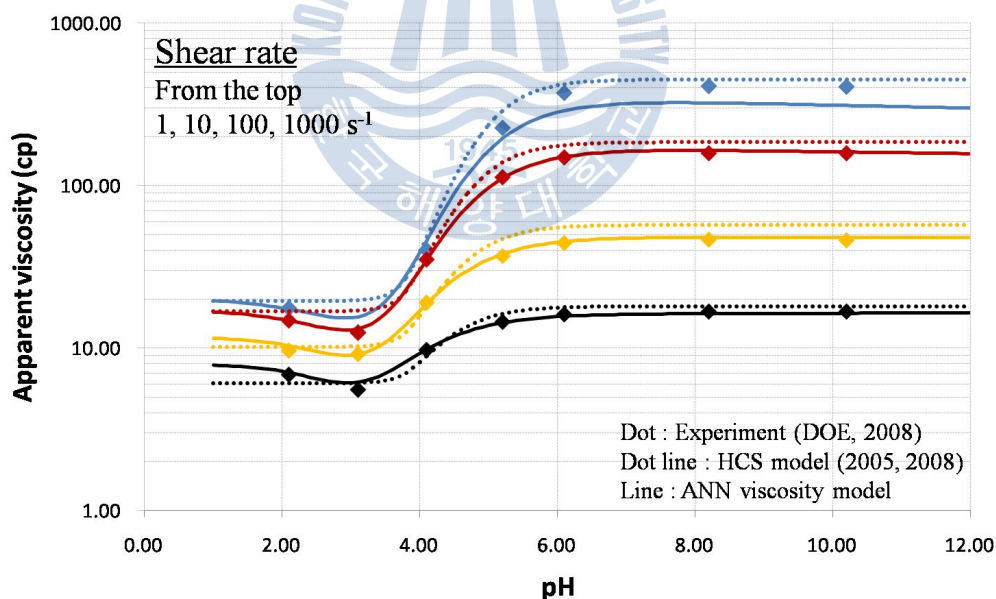


Fig. 4.10. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #1.

Fig. 4.11, 4.12는 data #1에서 폴리머 농도를 0.2, 0.8로, Fig. 4.13은 폴리머 수용액의 염도를 1 wt.%로 각각 바꾼 것인데 인공신경망 점도 모델은 HCS 모델에 비해 pH가 낮거나 전단율이 높을 때 점도추정곡선과 점도측정값의 차이가 더 줄어드는 것을 확인할 수 있다.

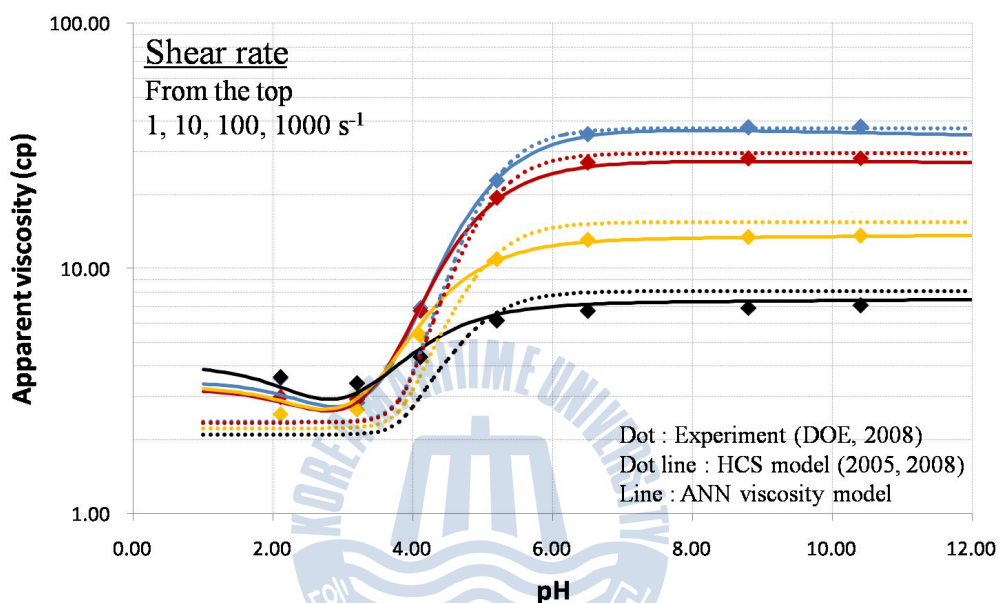


Fig. 4.11. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #2.

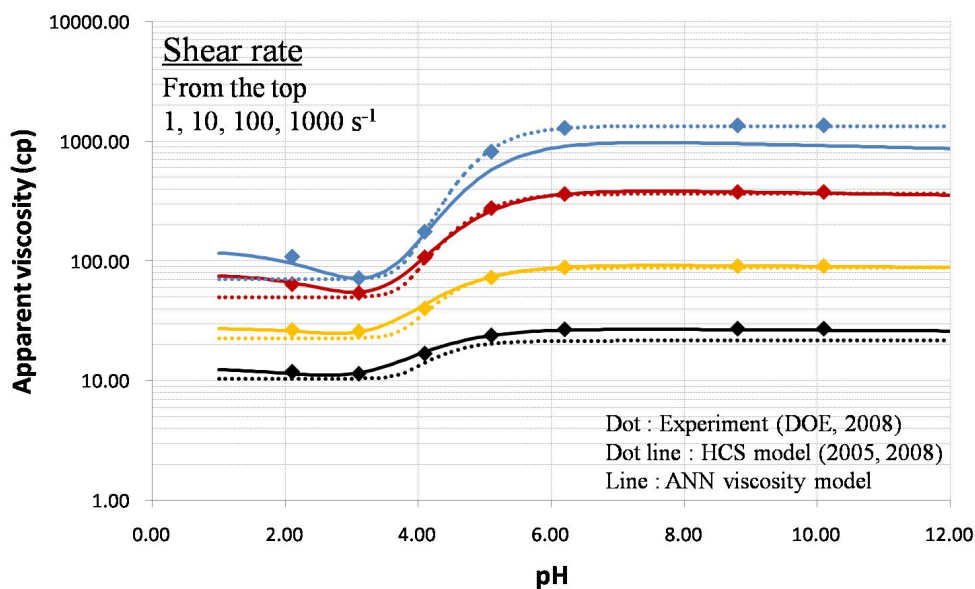


Fig. 4.12. A comparison between laboratory data and model estimations for

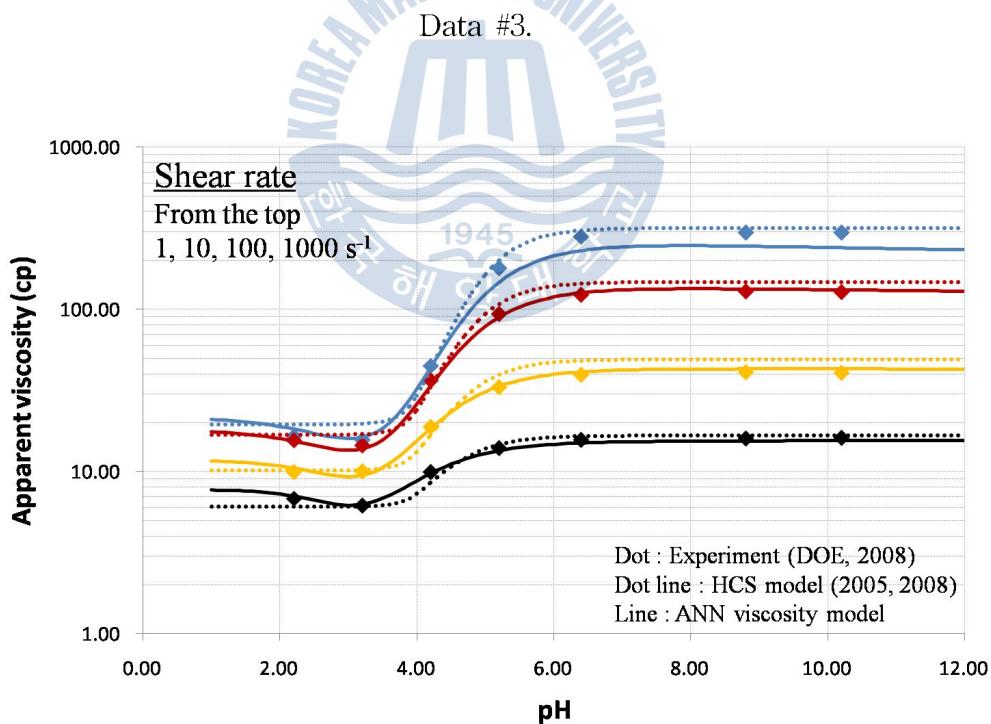


Fig. 4.13. A comparison between laboratory data and model estimations for
Data #4.

Fig. 4.14는 data #1에서 염도를 3 wt.%로 높인 것으로 HCS 모델에 비해 인공신경망 점도 모델로 추정된 점도가 측정점과 잘 맞는 것을 확연히 알 수 있다.

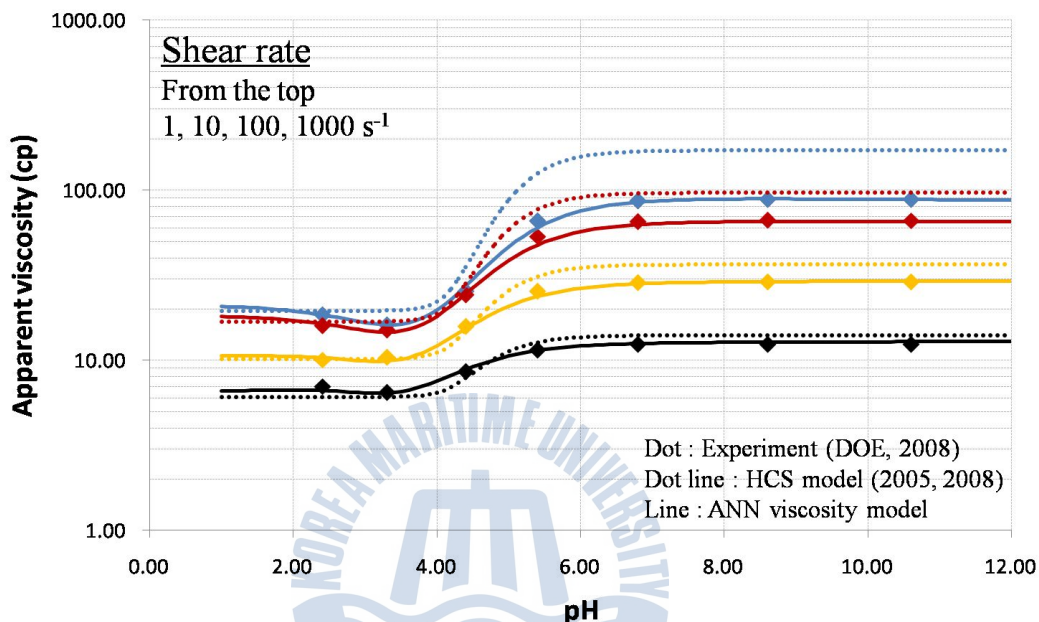


Fig. 4.14. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #5.

Fig. 4.15과 4.16은 가수분해정도를 25%, 100%로, Fig 4.17은 폴리머 분자량을 20으로 높인 것으로 전단율이 높을 때 인공신경망 점도 모델에 의한 점도 추정 곡선이 HCS 모델보다 측정점에 가깝게 지나는 것을 확인할 수 있다.

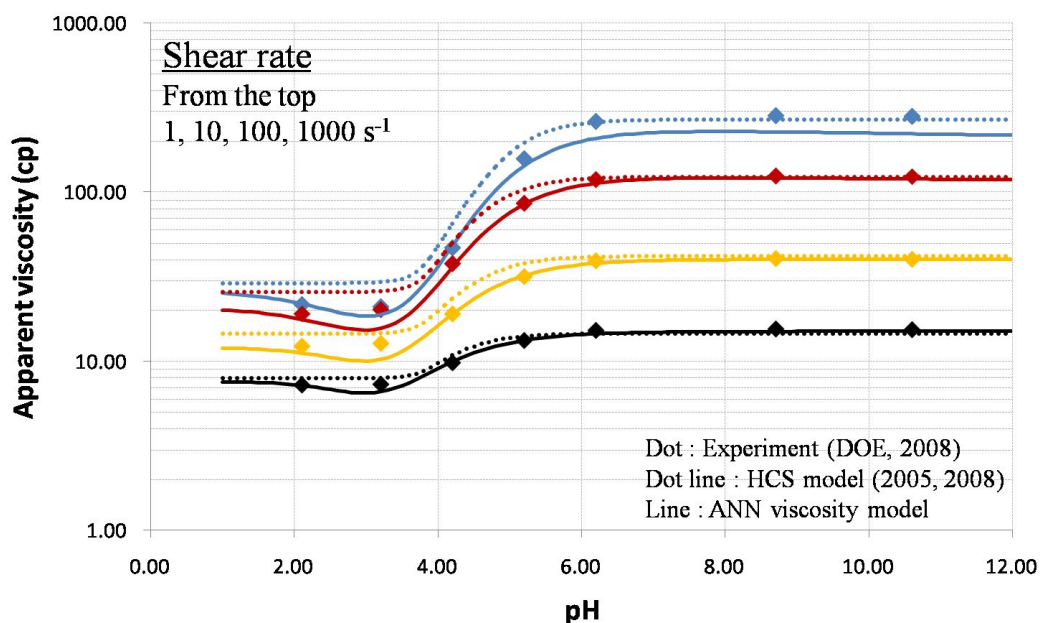


Fig. 4.15. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #6.

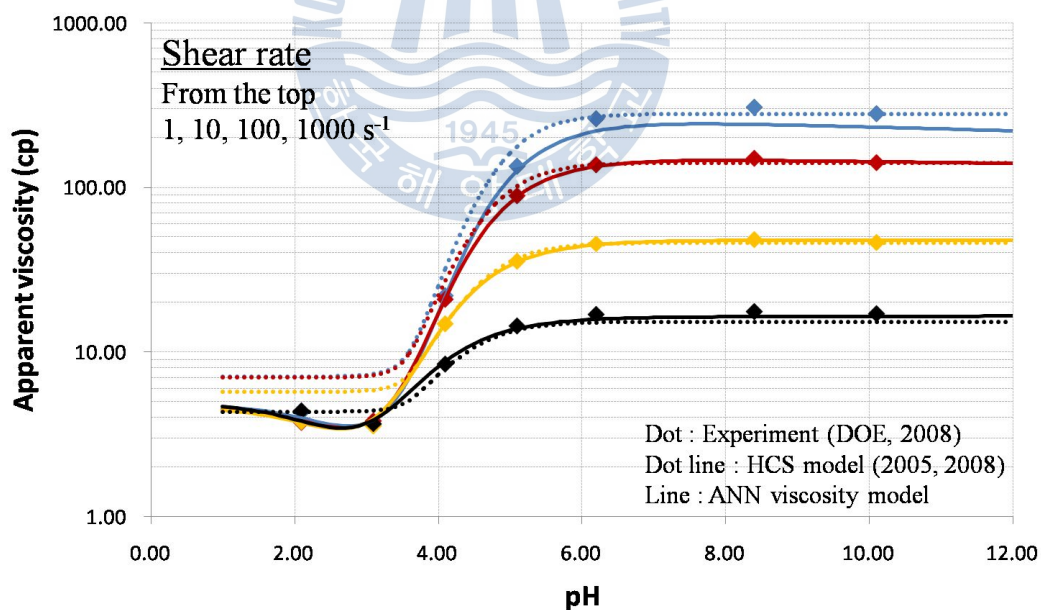


Fig. 4.16. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #7.

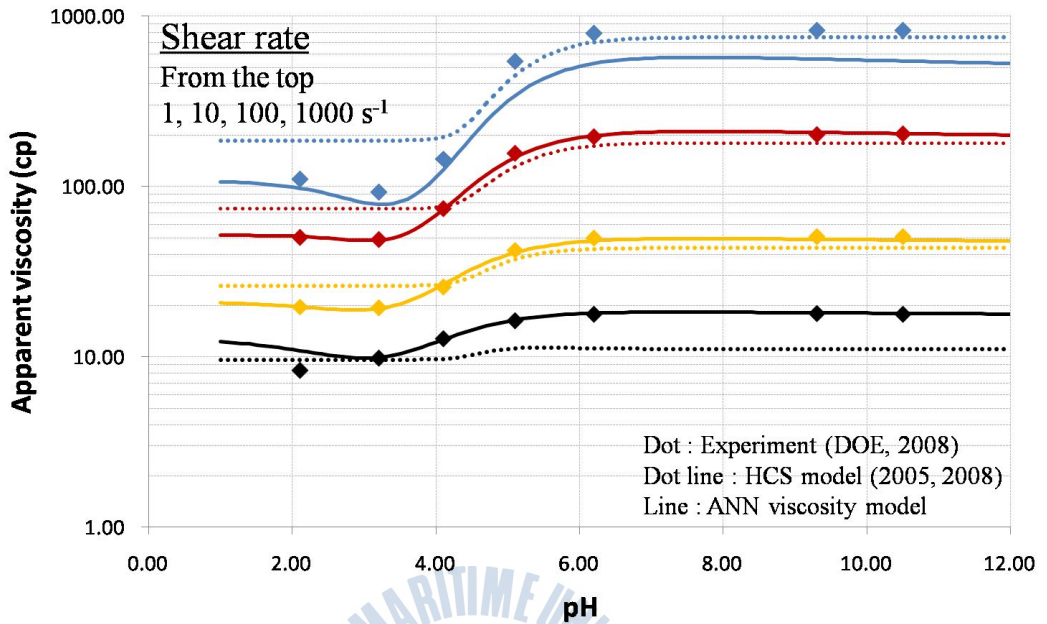


Fig. 4.17. A comparison between laboratory data and model estimations for Data #8.

기존 HCS 모델과 인공신경망 점도 모델로 추정된 점도의 정확성을 정량적으로 파악하기 위해 측정 점도와 두 모델로 추정된 점도의 차이를 나타내는 average absolute percentage error(AAPE)를 적용하였다(식 (4.4.3)). AAPE는 측정값과 추정값의 차이를 백분율로 표현하기 때문에 자료의 절대적인 차이 값이 다른 자료들과 비교한 결과에 미치는 영향이 적은 점이 특징이다.

$$AAPE = \frac{100}{n} \sum_{i=1}^n \left| \frac{x_i - y_i}{x_i} \right| \quad (4.4.3)$$

x_i : measured viscosity data

y_i : estimated viscosity data

n : number of data

인공신경망 점도 추정 모델과 HCS 모델에 의해 추정한 점도를 실험 측정값과 비교하여 각 data set별로 AAPE를 계산한 결과는 Fig. 4.18과 같다. 모든 data set에서 인공신경망 점도 추정 모델이 HCS 모델로 추정한 점도의 정확도보다 높았다. 특히 염도 3 wt.% 조건인 data #5에서 두 모델로 추정한 점도의 정확도 차이가 크게 나타났다.

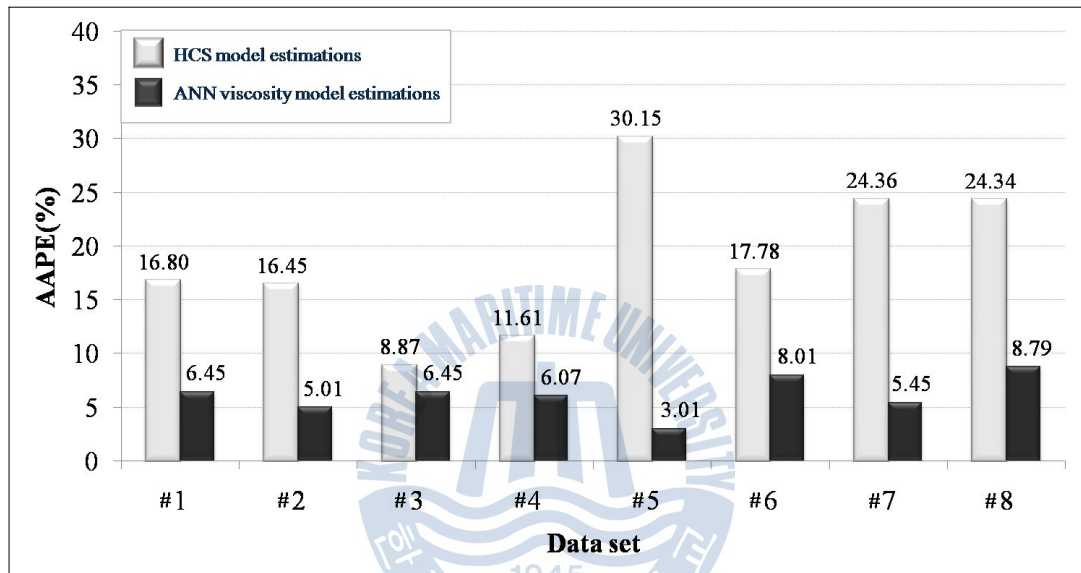


Fig. 4.18. AAPE between measured data and estimated data by ANN viscosity model and HCS model.

전단율이 1일 때 인공신경망 점도 모델과 HCS 모델에 의해 추정한 점도의 AAPE를 비교한 결과 data #3, 4를 제외한 모든 data set에서 인공신경망 점도 모델의 정확도가 높은 것을 확인하였다(Fig. 4.19).

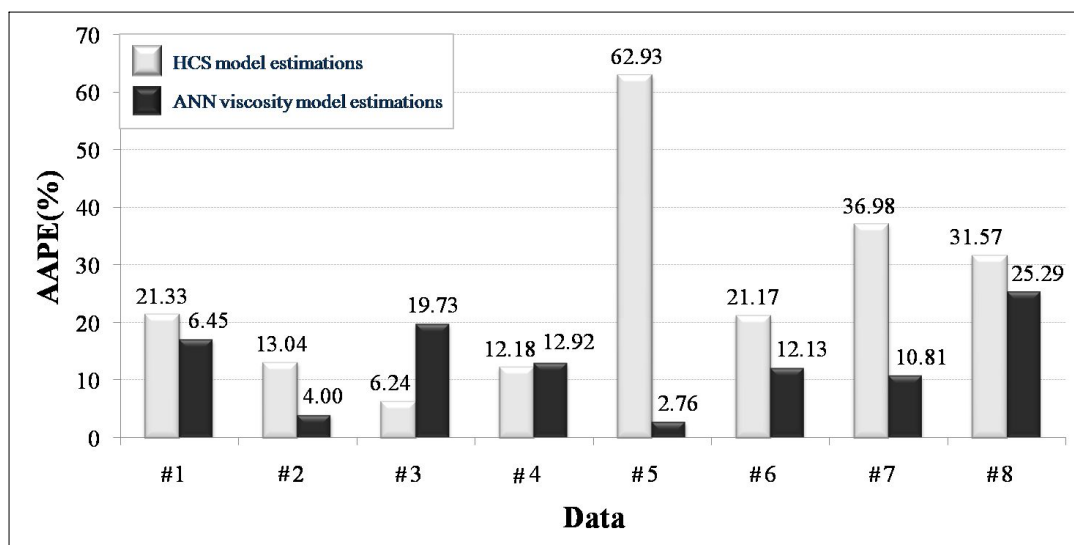
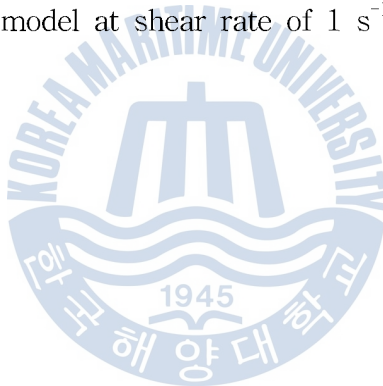


Fig. 4.19. AAPE between estimated data by HCS model and ANN viscosity model at shear rate of 1 s^{-1}



제 5 장 결 론

석유회수증진을 위해 기존 폴리머주입법을 적용하면 폴리머의 물리적 분해에 의해 석유회수율은 낮아지고 낮은 폴리머 주입성로 인해 비용은 높아진다. 이러한 문제점을 개선하기 위해서 연구되고 있는 pH 민감성 폴리머는 pH에 따라 점도가 크게 변하는 특성으로 인해 일반 폴리머 점도 모델을 적용할 수 없다. pH 민감성 폴리머 점도 추정을 위해 개발된 HCS 모델은 변수적 문제, 확장성, 활용성 등에 문제가 있다. 이 연구에서 이러한 문제점을 개선할 수 있는 새로운 점도 추정 모델 개발을 위해 인공신경망기법을 적용하였고, 그로부터 얻은 결과는 다음과 같다.

1. 인공신경망기법은 학습을 통해 비선형적 관계를 파악하는데 효과적이므로 저류층 특성화, 석유생산 최적화 등으로 석유공학 분야에 다양하게 적용되어 왔다. 이 연구에서는 석유 증진회수를 위해 연구되고 있는 pH 민감성 폴리머의 비선형적 점도 변화를 추정하기 위해 인공신경망기법을 적용하였다.

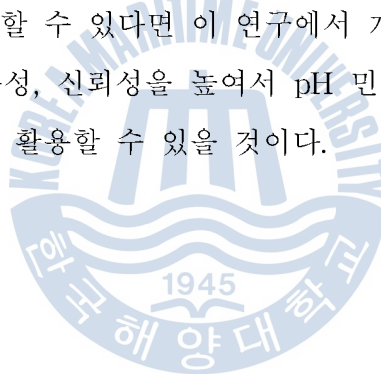
2. pH 민감성 폴리머 점도 추정을 위해 HCS 모델은 7개의 경험 변수를 포함한 21개의 변수가 필요했으나 인공신경망 점도 추정 모델은 pH 민감성 폴리머 점도에 영향을 미치고 상대적으로 확보하기 용이한 6개의 물성(pH, 폴리머 농도, 가수분해정도, 분자량, 염도, 전단율)만으로 점도 추정이 가능하였다.

3. 인공신경망 점도 추정 모델과 HCS 모델로 추정한 점도를 실험 측정값과 비교한 결과 모든 data set에서 pH 민감성 폴리머 점도 추정에 대한 정확도가 높았고 특히 염도가 3 wt.% 조건에서 두 모델로 각각 추정한 점도의 정확도가 크게 차이나는 것을 확인하였다. 해수의 평균 염도가 3 wt.%이고 기존 HCS 모델은 이 경우에 정확도가 크게 떨어짐을 고려해 볼 때 더 높은 염도에서

HCS 모델보다 정확하게 점도를 추정할 수 있다는 것은 인공신경망 점도 모델의 활용성을 높일 것이다.

4. HCS 모델은 수학적 관계식이므로 점도 추정을 위해 필요한 입력변수가 정해져 있지만 학습특성을 지닌 인공신경망기법은 상대적으로 입력변수에 대한 확장성이 높다.

이 연구에서 새로운 점도 추정 모델로 pH의 변화에 따른 pH 민감성 폴리머 점도 변화를 추정하였다. pH 민감성 폴리머 용액은 전반적으로 의가소성 유동 특성이 나타나므로 향후 전단율에 따른 점도 추정 연구를 해야 저류층에 주입된 후의 폴리머 점도 변화를 정확하게 추정할 수 있을 것이다. 또한, 학습자료가 많을수록 인공신경망의 정확도가 높아질 가능성이 크므로 다양한 조건에서 실험한 점도 자료를 확보할 수 있다면 이 연구에서 개발한 인공신경망 점도 추정 모델의 정확도와 활용성, 신뢰성을 높여서 pH 민감성 폴리머주입법의 설계와 평가를 위한 도구로써 활용할 수 있을 것이다.



참고문헌

오창석, «뉴로 컴퓨터 개론», 한국, 내하출판사(2000)

유현중, 「퍼지분석과 인공신경망을 이용한 코어 및 물리검층 자료의 통합 해석 연구」, 석사학위 논문, 한국(2009)

이종용, 「인공신경망을 이용한 석유 회수증진기법 선정 연구」, 석사학위 논문, 한국(2008)

임종세, 「석유회수증진(EOR) 기술 동향」, 석유, 제23권, 제1호, 한국(2007)

Choi, S.K., Ermel, Y.M., Bryant, S.L., Huh, C., and Sharma, M.M., 「Transport of a pH-Sensitive Polymer in Porous Media for Novel Mobility-Control Applications」, SPE, 99656, U.S.A.(2006)

Choi, S.K., 「pH Sensitive Polymers for Novel Conformance Control and Polymer Flooding Applications」, University of Texas at Austin, U.S.A.(2008)

Choi, S.K., Sharma, M.M., Bryant, S.L., and Huh, C., 「pH-Sensitive Polymers for Novel Conformance Control and Polymerflood Applications」, SPE, 121686, U.S.A.(2009)

Economides, M. J., Hill, A. D., and Ehlig-Economides, C., «Petroleum Production Systems», U.S.A., Prentice Hall(1994)

Ertekin, T. and Silpngarmlers, N., 「Optimization of formation analysis and evaluation protocols using neuro-simulation」, Petroleum Science and Engineering, Vol. 49, No. 3-4, Netherlands(2005)

Huh, C., Choi, S.K., and Sharma, M.M., 「A Rheological Optimal Mobility Control Applications」, SPE, 96914, U.S.A.(2005)

Lake, L.W., «Enhanced Oil Recovery», U.S.A., Prentice Hall(1989)

Lange, E.A. and Huh, C., 「A Polymer Thermal Decomposition Model and Its Application in Chemical EOR Process Simulation」, SPE, 27822, U.S.A.(1994)

Mohaghegh, S., 「Virtual-Intelligence Applications in Petroleum Engineering: Part1-Artificial Neural Networks」, JPT, Vol. 52, No. 9, U.S.A.(2000)

DOE Award No. DE-FC26-06NT15520, <http://www.netl.doe.gov>(2008)

Saputelli, L., Malki, H., Canelon, J., and Nikolaou, M., 「A Critical Overview of Artificial Neural Network Applications in the Context of Continuous Oil Field Optimization」, SPE, 77703, U.S.A.(2002)

Sorbie, K.S., «Polymer-Improved Oil Recovery», U.S.A., CRC press(1991)

Sutton, R.P., Kohse, B.F., Fanchi, J.R., and Lake, L.W., «Petroleum Engineering Handbook : Volume I General Engineering», SPE, U.S.A.(2006)

부 록

HCS 모델로 점도를 계산하기 위해 Microsoft® Visual Basic Application 프로그램을 사용하였고 변수 입력창은 Fig. A.1, 작성 코드는 Table A.1에 각각 나타내었다. HCS 모델에 필요한 폴리머 종류별 입력 변수는 Table A.2와 같다.

	A	B	C	D	E	F
1	Input parameters					
2	1. Equilibrium Swelling Ratio(Q)					
3					units	Input
4	1)	v	Specific volume of dry polymer		cm ³ /g	0.8
5	2)	pKa	-log(ka)			4.9
6		Ka	Dissociation constant of ionizable group on polymer			1.25893E-05
7	3)	Mn	Average molecular weight of polymer before crosslinking			8000000
8	4)	Mc	Average molecular weight between crosslinks			51.5323
9	5)	v _{2r}	Polymer volume fraction in the relaxed state			0.5
10	6)	x ₁	Polymer-solvent interaction parameter			0.8
11	7)	v ₁	Molar volume of solvent		cm ³ /mol	18
12	8)	I	Ionic strength of solvent			0.09
13						
14	2. Intrinsic viscosity lnI					
15	1)	a	Polymer specific empirical constant			481.46
16	2)	b	Polymer specific empirical constant			0.36
17						
18	3. Polymer solution viscosity in the zero-shear limit					
19	1)	η _s	Solvent viscosity		mPa·s(cp)	1
20	2)	C	Polymer concentration		g/cm ³	0.005
21	3)	K''	Polymer specific constant			1.84
22						
23	4. Viscosity for a given shear rate					
24	1)	η _∞	Limiting newtonian viscosity at the high shear limits			1
25	2)	α	empirical parameter			2
26	3)	e ₁	empirical parameter			-0.226
27	4)	e ₂	empirical parameter			-0.024
28	5)	e ₃	empirical parameter			0.07
29	6)	e ₄	empirical parameter			0.0152
30	7)	e ₅	empirical parameter			1.678
31						
32	Viscosity Calculation					
33						

Fig. A.1. Captured input screen in Microsoft® Excel worksheet for 0.5% Flopaam3330S prepared in 5.0% sodium chloride brine.

Table A.1. Microsoft® Excel VBA code for calculating HPAM viscosity by HCS model.

```

Dim ceta_i, alpha, e1, e2, e3, e4, e5 As Double

v = Cells(4, 6)
ka = Cells(6, 6)
Mn = Cells(7, 6)
Mc = Cells(8, 6)
v2r = Cells(9, 6)
x1 = Cells(10, 6)
V1 = Cells(11, 6)
i = Cells(12, 6)
a = Cells(15, 6)
b = Cells(16, 6)
ceta_s = Cells(19, 6)
C = Cells(20, 6)
k_1 = Cells(21, 6)
ceta_i = Cells(24, 6)
alpha = Cells(25, 6)
e1 = Cells(26, 6)
e2 = Cells(27, 6)
e3 = Cells(28, 6)
e4 = Cells(29, 6)
e5 = Cells(30, 6)

Dim k, a1, a2, a3, a4, v2s, e, comp, Q, y, dy As Double
Dim z As Integer
Dim ceta_a, ceta_o As Double
Dim n, epsilon, ceta, n_o As Double
Dim u As Integer
Dim r(4) As Double
a2 = (V1 / (v * Mc)) * (1 - 2 * Mc / Mn) * v2r
a3 = v2r ^ (-1 / 3)
a4 = 1 / (2 * v2r)

For u = 1 To 4 Step 1
r(1) = 1

```



```

r(2) = 10
r(3) = 100
r(4) = 1000

z = 0

For k = 1 To 12 Step 0.1
z = z + 1
a1 = (V1 / (4 * i)) * (1 / v) ^ (2) * (ka / ((10 ^ -k) + ka)) ^ 2
e = 1
v2s = 0.5

While e > 0.0000000001
comp = v2s
y = (x1 - a1) * v2s ^ 2 + (1 - a2 * a4) * v2s + a2 * a3 * v2s ^ (1 / 3) + Log(1 - v2s)
dy = 2 * (x1 - a1) * v2s + (1 - a2 * a4) + a2 * a3 / 3 * v2s ^ (-2 / 3) - (1 / (1 - v2s))
v2s = v2s - y / dy
e = Abs(comp - v2s)
Wend

Q = 1 / v2s
ceta_a = a * Q ^ b
ceta_o = ceta_s + ceta_s * C * ceta_a * (C * ceta_a) ^ k_1
n = e1 * Log(C * ceta_a) + e2
n_o = n + 1
ipsilon = e3 + e4 * (C * ceta_a) ^ (e5)
ceta = ceta_i + (ceta_o - ceta_i) * (1 + (ipsilon * r(u)) ^ alpha) ^ (n / alpha)
Worksheets("Results").Cells(2 + z, 1 + u).Value = ceta
Next k
Next u

```

Table A.2. Input parameters of HCS model for calculating viscosity(DOE, 2008).

No.	Symbol	Flopaam 3330s	Flopaam 3630s	Flopaam 2330s	ALP99VHM
Modified Brannon–Peppas Model					
1	\overline{v}	0.8	0.8	0.8	0.8
2	pK_a	4.9	5.5	4.9	4.7
3	$\overline{M_n}$	8,000,000	20,000,000	8,000,000	8,000,000
4	$\overline{M_c}$	71.35	71.35	71,30	72.06
5	$v_{2,r}$	0.5	0.5	0.5	0.5
6	χ_1	0.8	0.8	0.8	0.8
7	V_1	18	18	18	18
8	I	–			
9	pH	–			
Modified Mark–Houwink Equation					
10	a	481.46	692.26	592.79	371.19
11	b	0.36	0.19	0.26	0.57
New Power–Law Correlation					
12	η_s	1			
13	C	–			
14	k''	1.84	3.09	1.79	1.11
Carreua Equation					
15	η_∞	1			
16	γ	–			
17	e_1	–0.226	–0.262	–0.223	–0.189
18	e_2	–0.024	–0.118	–0.026	0.009
19	e_3	0.070	0.033	0.063	–0.087
20	e_4	1.52×10^{-2}	1.48×10^{-2}	2.36×10^{-3}	7.54×10^{-2}
21	e_5	1.678	3.234	2.664	0.708

이온세기(Ionic strength, I)는 식 (A.1)을 통해 계산하였고 염도에 따른 각 폴리머 수용액의 이온세기는 Table A.3과 같다.

$$I = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n c_i z_i^2 \quad (\text{A.1})$$

c_i : Molar concentration of i ion

z_i : Charge number of i ion

Table A.3. Ionic strength of polymer solvent depending on salinity.

Salinity (%)	0.5	1	3
Ionic strength	0.09	0.171	0.513

산해리상수(Acid dissociation constant, K_a)는 문헌을 통해 조사한 pK_a 를 이용하여 식 (A.2)로 계산하였다.

$$pK_a = -\log_{10} K_a \quad (\text{A.2})$$

감사의 글

벌써 2년의 시간이 지나 대학원 석사과정을 마치게 된 것에 대해 매우 기쁘게 생각합니다. 그 동안 많은 일이 있었고 제 인생의 전환기가 된 소중한 시간이었던 것 같습니다. 이러한 귀중한 깨달음을 느끼게 된 것은 무엇보다도 저에게 가르침을 주시고 작은 것에서부터 큰 것까지 너무도 많은 것을 도와준 소중한 사람들이 있었기 때문이라 생각합니다.

우선, 저의 지도교수님이신 임종세 교수님의 저를 향한 끊임없는 신뢰와 열정적인 가르침에 깊은 감사를 드립니다. 누구나에게 인생에 세 번의 기회가 온다고 한다면 저로써는 임종세 교수님의 가르침을 받게 된 것이 그 중 하나일 것이라 확신합니다. 학사와 석사 교육과정 중 항상 중요한 포인트를 짚어 주시고 진심으로 학생을 생각해주시는 장원일 교수님, 위트있는 농담과 학생을 향한 매너로 공부의 재미를 느끼게 해 주신 신성렬 교수님, 학자의 연구자세에 대한 표본을 보여주신 윤지호 교수님, 모든 것에 대해 열정적으로 가르쳐주시고 배려해주신 김성운 교수님, 작은 것에서부터 꼼꼼히 열정적으로 가르쳐주시신 허지희 교수님께 진심어린 감사를 전하고 싶습니다. 또한, 멀리 미국에 계신 허천 교수님께 바쁘신 와중에도 제 논문을 검토해주신 것에 대해 머리숙여 감사드립니다.

학부 2학년에 석유공학실험실의 일원이 된 이후 너무도 많은 것을 배우고 깨달음을 얻을 수 있었습니다. 저의 옆에서 힘들 때 항상 도와주고 멘토가 되어주며 인생의 벚이 되어준 선배님들, 동기들, 후배들에게 지금이야 비로소 가슴깊이 감사드립니다. 또한, 같은 학과에서 공부하며 만나지는 않았지만 항상 옆에서 많은 것을 도와주고 조언해주신 분들께 감사드리고 싶습니다. 저에게 이러한 분들이 없었다면 결코 지금의 제가 없을 것이라 생각합니다.

다시 한 번 깊이 감사드립니다.